

Das Hubbard-Modell auf dem
anisotropen und isotropen
Dreieckgitter in der
Fluktuations-Austausch-Näherung

Von der Gemeinsamen Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Technischen Universität Carolo-Wilhelmina
zu Braunschweig

zur Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften
(Dr.rer.nat.)

genehmigte
Dissertation

von
Marcus Wolfgang Renner
aus Duisburg

1. Referent:	Prof. Dr. W. Brenig
2. Referentin:	Prof. Dr. G. Zwicknagl
eingereicht am:	04.12.2003
mündliche Prüfung (Disputation) am:	06.02.2004
	2004

Vorveröffentlichungen der Dissertation

Teilergebnisse aus dieser Arbeit wurden mit Genehmigung der Gemeinsamen Naturwissenschaftlichen Fakultät, vertreten durch den Mentor der Arbeit, in folgenden Beiträgen vorab veröffentlicht:

Publikationen:

M. Renner, W. Brenig, *Spin- and Charge Excitations of the Triangular Hubbard-Model: a FLEX-Study*, cond-mat/0310244, eingereicht bei Phys. Rev. B.

Tagungsbeiträge:

M. Renner, W. Brenig, *Fluktuations-Austausch-Näherung im Dreiecksgitter* (Poster), Korrelationstage 2001, Dresden, 14.-17. Februar 2001.

M. Renner, W. Brenig, *Das 2D-Dreiecks-Gitter Hubbard Modell in der Fluktuations-Austausch-Näherung* (Poster), Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2001, Hamburg, 26.-30. März 2001.

M. Renner, W. Brenig, *Optische Leitfähigkeit des Hubbard-Modells auf dem 2D-Dreiecks-Gitter* (Poster), Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2002, Regensburg, 11.-15. März 2002.

M. Renner, W. Brenig, *Optical conductivity of the Hubbard-model on the triangular lattice* (Poster), Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 2003, Dresden, 24.-28. März 2003.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Material und Modell	9
2.1	Die organischen Supraleiter κ -(ET) ₂ X	9
2.1.1	Eigenschaften	9
2.1.2	Das Dimer-Modell	11
2.2	Das Natrium-Kobalt-Oxyhydrat	14
2.3	Beschreibung des Dreieckgitters	16
2.3.1	Das anisotrope Dreieckgitter	16
2.3.2	Das Ein-Band Hubbard-Modell	18
2.4	Das Hubbard-Modell	19
2.5	Grundzustand des Dreieckgitters	20
3	Die Fluktuations-Austausch-Näherung	23
3.1	Die FLEX Selbstkonsistenz-Gleichungen	25
3.2	Die γ -Contour	26
3.3	Bemerkungen zur FLEX-Näherung	28
4	Ergebnisse	29
4.1	Quasiteilchendispersion	31
4.1.1	Quasiteilchen	31
4.1.2	Diskussion der Quasiteilchendispersion	34
4.2	Paramagnonen	40
4.3	Die Selbstenergie	52
4.3.1	Nesting	53
4.3.2	Die Ein-Teilchen-Streureate	56
4.3.3	Im Σ nahe der Fermi-Energie	57
4.3.4	Temperaturabhängigkeit der Streureate	57
4.4	Die Ein-Teilchen-Spektralfunktionen	59
4.5	Globale und lokale Zustandsdichte	61
4.6	Die Paramagnon-Dispersion	66

4.7	Das isotrope Dreieckgitter	69
4.7.1	Dispersion und Zustandsdichte	69
4.7.2	Der Paramagnon-Peak	72
4.7.3	Die Selbstenergie	76
5	Die optische Leitfähigkeit	79
5.1	Strom Response	79
5.2	Die Vertexkorrektur	82
5.3	Ergebnisse	85
5.3.1	Effekt der Vertexkorrektur	86
5.3.2	Eine Parameterstudie	87
5.3.3	Die optische Relaxationsrate	90
6	Zusammenfassung und Diskussion	95
A	Implementierung der FLEX SK-Gleichungen	103
A.1	Die FLEX SK-Gleichungen auf der γ -Contour	103
A.2	Die Fouriertransformationen	106
A.3	Analytische Fortsetzungen	107
A.4	Reduktion des Speicherbedarfs	110
A.5	Symmetrien der Brillouin-Zone	110
A.6	Konvergenz zur Selbstkonsistenz	111
B	Das Programmpaket	113
B.1	Entwicklung	113
B.2	Kurzbeschreibung der Klassen	114
C	Finite-Size-Effekte	117

Kapitel 1

Einleitung

Schon vor der Entdeckung der Hochtemperatur-Supraleitung (HTSL) in den keramischen Kupferoxid-Verbindungen durch Bednorz und Müller im Jahr 1986 [1] wurde Supraleitung in organischen Verbindungen gefunden [2]. Im Gegensatz zu den seit 1911 bekannten klassischen Supraleitern [3] werden bei diesen neuartigen Materialien von Elektron-Phonon-Kopplung abweichende Mechanismen der Supraleitung diskutiert. Trotz der großen Fortschritte sowohl der experimentellen Technik als auch der theoretischen Beschreibung steht hierfür ein Konsens weiterhin aus. Aufgrund einiger Ähnlichkeiten zu den Kuprat-Supraleitern [4] werden von der Forschung an den organischen Verbindungen Beiträge zum Verständnis der Supraleitung in beiden Materialfamilien erhofft. Die organischen Supraleiter zeichnen sich durch eine Vielzahl von Grundzuständen aus, die die Verbindungen bei Variation der Kristallstruktur und in Abhängigkeit von äußeren Parametern wie z.B. Druck und Magnetfeld einnehmen.

In dieser Arbeit wird das Ein-Band Hubbard-Modell im normalleitenden Zustand auf dem anisotropen und isotropen Dreieckgitter mit der Methode der Fluktuations-Austausch-Näherung (*FLuctuation EXchange Approximation*, FLEX) untersucht. Im Hinblick auf die organischen Supraleiter κ -(ET)₂X wird das anisotrope Dreieckgitter und für das supraleitende Natrium-Kobalt-Oxyhydrat das isotrope Dreieckgitter betrachtet. Dabei werden unter anderem die Struktur der Spinanregungen, die impulsabhängige Ein-Teilchen-Streureate und die optische Leitfähigkeit untersucht.

In der Gruppe der supraleitenden organischen Verbindungen gilt der Klasse der Bisethyldithio-tetrathiafulvalen-Ladungstransfersalze (kurz ET-Salze) und dort speziell den κ -(ET)₂X besonderes Interesse. Ihre Eigenschaften werden in Abschnitt 2.1 beschrieben. In diesen Verbindungen der Molekül-

packung κ , in denen die ET-Molekülebenen geschichtet zwischen isolierenden Ebenen von Anionen X vorliegen, wird mit $T_c \sim 12\text{K}$ die höchste Sprungtemperatur der quasi-zweidimensionalen Vertreter gefunden (siehe Abb. 2.2). Die relevante elektronische Struktur einer ET-Ebene wird mit den antibindenden π -Orbitalen von ET-Dimeren beschrieben, die auf einem *anisotropen Dreiecksgitter* angeordnet sind [5]. Im gemeinsamen Phasendiagramm der Vertreter $X=\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Cl}$, $X=\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$ und $X=\text{Cu}(\text{NCS})_2$ ist die supraleitende Phase zu einem antiferromagnetischen Mott-Isolator benachbart [6–11], wobei hier der Druck eine äquivalente Rolle zur Dotierung bei den Kupraten übernimmt [5, 7] (siehe Abb. 2.1). Das Leitungsband wird als halb gefüllt angesehen [5, 12].

Die Entdeckung von Supraleitung in der Übergangsmetallverbindung Natrium-Kobalt-Oxyhydrat $\text{Na}_{0.35}\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ Anfang 2003 [13] mit $y = 1.3$ und einer Sprungtemperatur von $T_c = 4.5\text{K}$ hat große Aufmerksamkeit auf diese Verbindung und ihre besondere Kristallstruktur gelenkt [14–19]. Das Natrium-Kobalt-Oxyhydrat wird in Abschnitt 2.2 beschrieben. Ausgehend von der Verbindung NaCo_2O_4 erhöht das gleichzeitige Einbringen von Wasser und Entfernen von Natrium den zweidimensionalen Charakter der CoO_2 -Ebenen in diesem Material und dotiert sie erheblich. In der CoO_2 -Ebene sind die Kobalt-Atome auf einem *isotropen Dreiecksgitter* angeordnet. Im Gegensatz zu den $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ ist das Leitungsband mit einer Ladungsträgerdichte von etwa 1.35 Elektronen pro Kobalt-Atom weit entfernt von halber Füllung [13, 20].

An dieser Stelle bietet sich ein Vergleich mit den Kuprat-HTSL an. Alle drei Materialfamilien weisen eine stark anisotrope elektronische Struktur mit schwach gekoppelten quasi-zweidimensionalen Schichten auf. In den CuO_2 -Ebenen der Kuprate bilden die Kupfer- und Sauerstoff-Atome ein *Quadratgitter*. Aufgrund der direkten Nachbarschaft der supraleitenden und antiferromagnetischen Phase sind die Phasendiagramme der $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ und der Kuprate qualitativ vergleichbar (Abb. 2.1). Obwohl im Gegensatz zum Quadratgitter auf dem Dreieckgitter eine Néel-Ordnung aufgrund der topologischen Frustration bei halber Füllung behindert wird, kann in numerischen Untersuchungen des Heisenberg-Modells auf endlichen Systemen langreichweitige antiferromagnetische Ordnung nachgewiesen werden [21, 22].

Die Realisierung des Quadratgitters auf der einen sowie des anisotropen und isotropen Dreieckgitters auf der anderen Seite in den drei Materialfamilien wirft im besonderen die Frage auf, in wieweit die verschiedenen Gittertopologien auch unter Berücksichtigung der jeweiligen Dotierungen gemeinsam beschreibbar sind. So haben Kondo und Moriya ein gemeinsames Phasendia-

gramm der Kuprate und organischen Verbindungen vorgeschlagen [23]. In allen Vertretern der drei Materialfamilien werden Anzeichen starker elektronischer Korrelationen beobachtet und als Ursache sowohl der ungewöhnlichen metallischen Eigenschaften als auch der Supraleitung diskutiert.¹

Sowohl bei den klassischen als auch bei den neuartigen Supraleitern wird der Suprastrom von Elektronenpaaren, den Cooper-Paaren, getragen [29]. Bei der klassischen BCS-Supraleitung [30, 31] wird dabei die attraktive Wechselwirkung zwischen den Elektronen durch den Austausch von Phononen vermittelt und die Paarwellenfunktion – der Ordnungsparameter – hat *s*-Wellen-Symmetrie. Bei den neuartigen Supraleitern ist der Mechanismus der Paarbildung noch ungeklärt. Abweichend von der BCS-Theorie wird bei den lochdotierten Kuprat-HTSL ein Ordnungsparameter mit *d*-Wellen-Symmetrie nachgewiesen [32–34]. Mit der Mehrzahl der experimentellen Verfahren und theoretischen Ansätze wird bei den organischen Verbindungen ebenfalls ein *d*-Wellen-symmetrischer Ordnungsparameter gefunden [27, 35]. Allerdings ist der experimentelle Befund nicht eindeutig [36].²

Ausgehend von der Annahme eines elektronischen Paarbildungsmechanismus ist es naheliegend, daß die ungewöhnlichen metallischen Eigenschaften der Materialien den Schlüssel zum Verständnis der Supraleitung liefern können. Der Diskussion potentieller Mechanismen der Supraleitung ist also eine detaillierte Aufklärung der elektronischen Struktur im normalleitenden Zustand voranzustellen.

Die elektronischen Eigenschaften eines normalen Metalls werden im Rahmen der Fermiflüssigkeitstheorie gut beschrieben. In den vorgestellten Materialien werden Abweichungen vom Verhalten einer normalen Fermiflüssigkeit im normalleitenden Zustand beobachtet, bei den organischen Verbindungen im temperaturabhängigen Widerstand [7, 39–41], der optischen Leitfähigkeit [42, 43] und anderen experimentell zugänglichen Größen (siehe dazu [12]). Als Ursache hierfür werden dynamische antiferromagnetische Korrelationen diskutiert. Ihre Existenz konnte beispielsweise in unterdotierten bis nahezu optimal dotierten Kupraten gezeigt werden [44, 45]. Obgleich bei den organischen Verbindungen die experimentellen Resultate nicht eindeutig sind, werden die Anomalien im temperaturabhängigen Widerstand und in NMR-

¹Übersichten hierzu geben für die Kuprat-HTSL [24–26] und für die organische Supraleiter [12, 27, 28].

²Im Fall der noch jungen CoO₂-Supraleiter ist eine Aussage zur Symmetrie des Ordnungsparameters aufgrund experimenteller Daten bislang kaum möglich. Allerdings gibt es Vorschläge für Ordnungsparameter mit *p*- [15], *d*- [16, 18, 37] und *f*-Wellen-Symmetrie [17, 38].

Messungen [46–48] auf antiferromagnetische Fluktuationen zurückgeführt. Auch für das Natrium-Kobalt-Oxyhydrat liegen erste experimentelle Anzeichen starker Spinfluktuationen vor [49, 50].

Ausgangspunkt zahlreicher Untersuchungen speziell zum anisotropen Dreieckgitter ist das Ein-Band Hubbard-Modell. Bei den organischen Materialien beschreibt es das Leitungsband der antibindenden π -Orbitale, das durch starke Dimerisierung vom Valenzband der bindenden Orbitale getrennt ist. Im Dimer-Modell nach [5] führt die Vernachlässigung der Bandaufspaltung aufgrund einer Nichtäquivalenz von Dimer-Positionen zur Beschreibung mit *einem* Tight-Binding Band. Weiterhin wird das Ein-Band Hubbard-Modell als ein Modell der elektronischen Struktur der CoO_2 -Ebenen im Natrium-Kobalt-Oxyhydrat angesehen [15–17, 51]. Das Ein-Band Hubbard-Modell auf dem anisotropen und isotropen Dreieckgitter wird in Abschnitt 2.3 vorgestellt.

Eine besondere Schwierigkeit bei der Behandlung des vorliegenden stark korrelierten Vielteilchen-Systems besteht in der Dimensionalität, die durch die ET- bzw. CoO_2 -Ebenen vorgegeben wird [52]. In drei Dimensionen liefern *mean-field*- und dynamische *mean-field*-Rechnungen wegen der hohen Koordinationszahl der Gitterplätze häufig gute Ergebnisse.

In einer Dimension kann man auf eine Vielzahl von Methoden wie z.B. Bosonisierung oder den Bethe-Ansatz zurückgreifen. Die numerischen Verfahren der exakten Diagonalisierung und Quanten-Monte-Carlo-Rechnungen sind hier auf große endliche Systeme anwendbar.

Im vorliegenden Fall von zwei Dimensionen fehlen diese exakten Ansätze und die numerischen Verfahren sind wegen des erheblichen Aufwands bei höheren Koordinationszahlen auf kleine Systeme, Quanten-Monte-Carlo auch auf hohe Temperaturen, beschränkt.

Die in Richtung kleiner Dimensionen anwachsende Bedeutung der Fluktuationen um das mittlere Feld macht andererseits die *mean-field*artigen Verfahren hier oft unbrauchbar.

Die elektronische Struktur besonders der Kuprat-HTSL ist mit einer Vielzahl von phänomenologischen Ansätzen wie der marginalen Fermiflüssigkeit [53], der nahezu antiferromagnetischen Fermiflüssigkeit [54, 55] und der $SO(5)$ -Symmetrie [56] betrachtet worden, die Abweichungen vom normalen Fermiflüssigkeitsverhalten ergeben. Andersons ursprüngliche Formulierung des *Resonating Valence Bond* Zustands (RVB) auf dem Dreieckgitter [57] hat zahlreiche Arbeiten gerade zu den organischen Verbindungen $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ und dem Natrium-Kobalt-Oxyhydrat motiviert.

In der vorliegenden Arbeit wird die elektronische Struktur des Hubbard-Modells auf dem (an)isotropen Dreieckgitter mit der Methode der Fluktuations-Austausch-Näherung (FLEX) [58] untersucht. Sie wird in Kapitel 3 vorgestellt. Als selbstkonsistente diagrammatische Näherung erlaubt sie ausgehend von schwacher Wechselwirkung Betrachtungen bis zu einer Hubbard-Abstoßung U von der Größenordnung der Bandbreite W .

Für die organischen Verbindungen mit einer effektiven Hubbard-Abstoßung von $U \sim 6t < W$ [12] ist die Verwendung der FLEX-Näherung gerechtfertigt. Im Fall des Natrium-Kobalt-Oxyhydrats ergeben Abschätzungen hingegen eine Hubbard-Abstoßung $U \gg W$ [59, 60]. Eine Betrachtung des isotropen Dreieckgitters mit der FLEX-Methode ist also als eine Annäherung vom Bereich schwacher Kopplung an die für $\text{Na}_{0.35}\text{CoO}_2 \cdot 1.3\text{H}_2\text{O}$ relevante Wechselwirkungsstärke anzusehen.

Die Renormierung der Quasiteilchen durch Summation über Beiträge der wichtigsten Diagrammklassen, Leiter- und Blasendiagramme, kann hier schon bei mittleren Temperaturen zu Abweichungen vom Verhalten einer normalen Fermiflüssigkeit führen [61]. Dabei ermöglichen die in der FLEX-Näherung enthaltenen Spinfluktuationen die Beschreibung der ungewöhnlichen metallischen Eigenschaften der Materialien. Im Grenzfall $T \rightarrow 0$ liefert die störungstheoretische FLEX-Näherung wieder Ergebnisse, die in Übereinstimmung mit den Vorhersagen der Fermiflüssigkeitstheorie sind [62].

Mit der Einführung eines Hüpfmatrixelements t' zu übernächsten Nachbarn auf dem Quadratgitter in nur *eine* diagonale Richtung geht die Gittertopologie kontinuierlich vom Quadratgitter ($t' = 0$) in die des isotropen Dreieckgitters ($t' = t$) über. Das hier untersuchte $t - t' - U$ Modell bietet also über die Betrachtung des anisotropen und isotropen Dreieckgitters hinaus Anschluß an die zahlreichen Arbeiten zum Quadratgitter in FLEX-Näherung [61, 63–67].

Für die organischen Verbindungen $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ wird eine anisotrope diagonale Kopplung von $t' \sim 0.8t$ als relevant angesehen [5]. Hier ist eine Darstellung impulsabhängiger Größen auf der Brillouin-Zone (BZ) des Quadratgitters üblich [68–72]. Im isotropen Fall kann die Quadratgitter-Darstellung in die hexagonal symmetrische BZ des Dreieckgitters überführt werden. In der vorliegenden Arbeit werden Gittertopologien von $t' = 0.7t$ bis $t' = t$ mit Teilchen- und Lochdotierung bis zu 40% betrachtet. Ausgangspunkte sind dabei die Parameterkombinationen $t' = 0.8t$ und halbe Füllung $\delta = 0$ der $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ sowie $t' = t$ bei Dotierungen von $\delta = \pm 0.35$, wobei $\delta = -0.35$ als Dotierung des supraleitenden Natrium-Kobalt-Oxyhydrats angesehen wird.

Der Ergebnisteil dieser Arbeit gliedert sich in Betrachtungen zum anisotropen Dreieckgitter in den Abschnitten 4.1-4.6 und zum isotropen Dreieckgitter in Abschnitt 4.7 sowie die Untersuchungen der optischen Leitfähigkeit in Kapitel 5.

Ein zentraler Punkt ist die Untersuchung der Quasiteilchen-Renormierung durch den Austausch von Spinfluktuationen in Abhängigkeit von der diagonalen Kopplung t' und der Dotierung δ . Auf dem Quadratgitter zeigt sich die Nähe zum antiferromagnetisch geordneten Zustand in einem dominanten Peak des statischen Spin-Strukturfaktors am Wellenvektor $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$. Die Dispersion und speziell die Form und Nesting-Eigenschaften der Fermifläche bieten auf dem (an)isotropen Dreieckgitter ganz andere Voraussetzungen für die Ausprägung von Spinfluktuationen. Zum Beispiel weist die Fermifläche einen deutlichen Abstand zu den Bereichen lokal erhöhter Zustandsdichte an den Sattelpunkten $(\pm\pi, 0)$ und $(0, \pm\pi)$ auf. Weiterhin ist die Zustandsdichte nicht Teilchen-Loch-symmetrisch und die Van-Hove-Singularität liegt bei halber Füllung oberhalb des chemischen Potentials.³ Anhand der Spinanregungen wird das Zusammenspiel der lokalen Zustandsdichte und der näherungsweise erfüllten Nesting-Bedingung an der Fermifläche betrachtet. Besondere Aufmerksamkeit gilt dem Übergang der Spinanregungen von der Impulsraumstruktur des Quadrat- zu der des Dreieckgitters und der Unterdrückung der Instabilitäten zu geordneten Zuständen durch die geometrische Frustration.

Verglichen mit dem Quadratgitter ist hier eine Erhöhung der Anregungsenergie der Spinfluktuationen und damit verbunden eine Ausdehnung des Temperaturbereichs mit normalem Fermiflüssigkeitsverhalten zu erwarten. Die Anisotropie und Temperaturabhängigkeit der Ein-Teilchen-Streuraten werden untersucht und bei den für die κ -(ET)₂X relevanten Parameterkombinationen mit experimentellen Beobachtungen an diesen Materialien verglichen.

Im gemeinsamen Phasendiagramm der κ -(ET)₂X spielt hydrostatischer Druck und der Austausch von Anionen X eine analoge Rolle zur Dotierung bei den Kupraten. Das Phasendiagramm deutet auf eine Reduktion der elektronischen Korrelationen mit wachsendem Druck hin. Für die Korrelationsstärke ist im vorliegenden Modell die lokale Hubbard-Wechselwirkung U maßgeblich. Eine Identifikation des Drucks allein mit der inversen Hubbard-Wechselwirkung ist jedoch nicht hinreichend, da U wiederum mit den Hüpfam-

³Die Abwesenheit der Teilchen-Loch-Symmetrie macht eine Wahl des Vorzeichens des Hüpfmatrixelements t notwendig. Hier wird $t = +1$ verwendet, wodurch auf dem isotropen Dreieckgitter die Van-Hove-Singularität der Zustandsdichte bei $\omega = +2t$ liegt. Für $t' < t$ und im $t - t'' - U$ Modell des isotropen Dreieckgitters liegen jeweils zwei Singularitäten der Zustandsdichte vor.

plituden t und t' verbunden ist [12, 73–75]. Bezug nehmend auf das gemeinsame Phasendiagramm wird die Stärke der Spinfluktuationen in Abhängigkeit von U und t' diskutiert. Weiterhin wird der Frage nach der Größe der effektiven Hubbard-Abstoßung der organischen Verbindungen nachgegangen.

Die Dispersion des Dimer-Modells nach [5] stellt gegenüber der Bandstruktur der organischen Verbindungen κ -(ET) $_2$ X, die mit verschiedenen experimentellen Methoden detailliert untersucht worden ist [76], eine erhebliche Vereinfachung dar. Die Relevanz des vorliegenden Ein-Band Modells wird anhand eines Vergleichs mit den Resultaten von Mehr-Band Modellen [75] und experimentellen Größen diskutiert.

Im Gegensatz zum einfachen $t - U$ Modell auf dem isotropen Dreiecksgitter zeigt die LDA-Bandstruktur der Ausgangsverbindung NaCo $_2$ O $_4$ ein lokales Minimum im Zentrum der BZ [59], welches mit der Hinzunahme von Hüpfprozessen zu übernächsten Nachbarn mit der Amplitude $t'' < 0$ für das isotrope Dreiecksgitter modelliert werden kann. In Abschnitt 4.7 werden die Dispersion, die Nesting-Eigenschaften der Fermifläche, Spinanregungen und die Ein-Teilchen-Streuratens des $t - U$ und $t - t'' - U$ Modells in einem weiten Dotierungsbereich gegenübergestellt.

Eine vielgenutzte Methode zur Untersuchung der organischen Verbindungen ist die Infrarot-Spektroskopie [77]. Dabei wird aus Messungen der Reflexivität die dynamische optische Leitfähigkeit $\sigma(\omega)$ bestimmt, die bei den Vertretern der κ -(ET) $_2$ X mit X=Cu[N(CN) $_2$]Br und X=Cu(NCS) $_2$ erst unterhalb von $T \sim 50$ K einen Drude-artigen Peak bei $\omega = 0$ aufweist.

In Kapitel 5 dieser Arbeit wird die optische Leitfähigkeit aus der Zwei-Teilchen Größe der Strom-Strom-Suszeptibilität χ_{jj} berechnet. Da die FLEX-Näherung eine erhaltende Näherung für Ein-Teilchen-Größen ist [78, 79], sind für die Bestimmung von χ_{jj} im allgemeinen Vertexkorrekturen zu beachten. Die optische Leitfähigkeit wird mit einer genäherten Vertexkorrektur berechnet, deren Einfluß auf $\sigma(\omega)$ anhand einer Gegenüberstellung mit dem unkorrigierten Fall diskutiert wird. Ausgehend von den Parametern der κ -(ET) $_2$ X werden die Temperaturabhängigkeit des Drude-Peaks und die Zwei-Teilchen-Streurate mit experimentellen Daten verglichen.

Kapitel 2

Material und Modell

2.1 Die organischen Supraleiter κ -(ET)₂X

In der großen Familie der organischen Metalle gilt der Gruppe der quasi-zweidimensionalen Verbindungen (BEDT-TTF)₂X besonderes Interesse. Hierbei steht BEDT-TTF oder kurz ET für das organische Molekül Bisethylenedithio-tetrathiafulvalen und X für verschiedene Anionen. Ein vorangestellter griechischer Buchstabe bezeichnet die unterschiedlichen Packungsarten der nahezu planaren Moleküle. In dieser Arbeit wird die Packungsart κ mit den Anionen X=Cu[N(CN)₂]Cl, Cu[N(CN)₂]Br und Cu(NCS)₂ betrachtet.

Diverse Analogien zu den Hochtemperatur-Supraleitern haben zahlreiche experimentelle und theoretische Arbeiten motiviert. An dieser Stelle kann nur eine Auswahl von Eigenschaften der κ -(ET)₂X genannt werden. Übersichtsartikel sind [12, 27, 28, 36, 76, 80, 81].

2.1.1 Eigenschaften

Die erwähnten Vertreter der κ -(ET)₂X Ladungstransfer-Salze sind Typ II Supraleiter, wobei bei X=Cu[N(CN)₂]Cl der supraleitende Zustand nur unter Druck auftritt. Die Sprungtemperatur von $T_c = 12.5\text{K}$ für X=Cu[N(CN)₂]Br ist bei Umgebungsdruck die höchste unter den quasi-zweidimensionalen organischen Verbindungen.

Eine Analogie zu den Kuprat-Supraleitern ist die schichtartige Struktur der κ -(ET)₂X. Die Leitfähigkeit parallel zu den ET-Ebenen ist gegenüber der dazu senkrechten Richtung um 3–5 Größenordnungen erhöht [81].

Die experimentell beobachtete Erhöhung der effektiven Masse gegenüber der Bandmasse ist eines von vielen Indizien einer substantiellen Renormierung der Ladungsträger aufgrund von Vielteilchen-Korrelationen. Die Erhöhung des Widerstands mit der Temperatur gemäß $\rho \propto T^2$ (bis $T \sim 50\text{K}$ bei

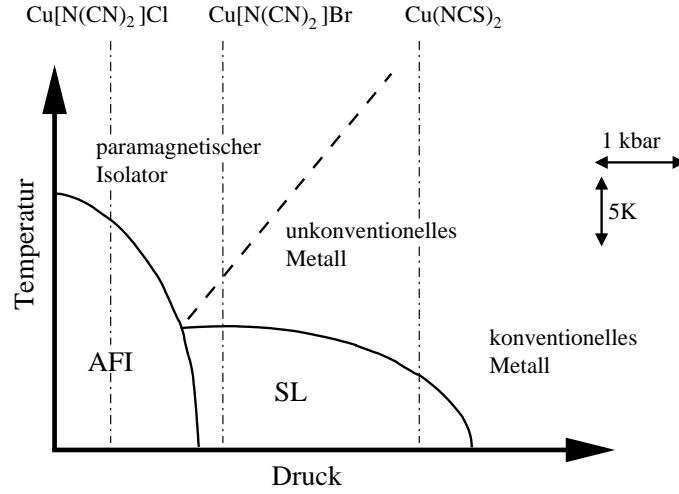


Abbildung 2.1: Schematisches Druck-Temperatur Phasendiagramm der κ -(ET)₂X Familie nach [5,7]. AFI: Antiferromagnetischer Isolator, SL: Supraleitende Phase.

$X=\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$ und $X=\text{Cu}(\text{NCS})_2$ [7]) ist charakteristisch für einen von Elektron-Elektron-Wechselwirkung dominierten Streumechanismus [82].

Die Diskussion des supraleitenden Zustands wird durch zum Teil kontroverse experimentelle Befunde u.a. des Isotopeneffekts erschwert. Bei von Phononen vermittelter Supraleitung (BCS) verändert sich die Sprungtemperatur mit der mittleren Isotopenmasse m gemäß $T_c \propto m^{-1/2}$. Beim Austausch von ^1H gegen ^2D in κ -(ET)₂Cu(SCN)₂ wird ein großer inverser Isotopeneffekt beobachtet [83]. Werden hingegen ^{12}C gegen ^{13}C und ^{32}S gegen ^{34}S Isotope getauscht, so wird eine BCS-artige Reduktion von T_c gefunden [83].

Ebenso kontrovers sind die experimentellen Ergebnisse bezüglich der Symmetrie des Ordnungsparameters der Supraleitung, wobei die Mehrzahl der verwendeten Techniken einen nicht-BSC-artigen Mechanismus unterstützen [12,27]. J. Schmalian findet für ein Zwei-Band Hubbard-Modell der κ -(ET)₂X in der FLEX-Näherung einen Ordnungsparameter der Supraleitung mit d -Wellen-Symmetrie [35].

Neben Vorschlägen für einen kombinierten Elektron-Elektron- und Elektron-Phonon-Mechanismus [84] ist ein von Spinfluktuationen dominierter Streumechanismus ein vielversprechender Kandidat zur Erklärung der unkonventionellen Eigenschaften in der normalleitenden Phase sowie für den Mechanismus der Supraleitung sowohl von experimenteller als auch theoretischer Seite [35, 70, 71, 75, 85].

Das in [5] und [7] vorgeschlagene und in Abb. 2.1 dargestellte kombinierte Phasendiagramm ist mit der supraleitenden Phase benachbart zur Phase des antiferromagnetischen Isolators ähnlich dem der lochdotierten Kuprat-Supraleiter. Allerdings spielt bei den organischen Verbindungen der Druck die Rolle der Dotierung, während das Leitungsband als halb gefüllt angesehen wird. Hydrostatischer und chemischer Druck durch Austausch der Anionen verändert mikroskopisch den Überlapp der Molekülorbitale in der ET-Schicht. Abb. 2.1 faßt die einzelnen komplexen Druck-Temperatur Phasendiagramme (mit Koexistenz von Antiferromagnetismus und Supraleitung in κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Br [86]) der drei Vertreter der κ -(ET)₂X zusammen und stellt ihnen gegenüber folglich eine Vereinfachung dar, die aber wesentliche Aspekte der einzelnen Phasendiagramme enthält.

Der Phasenübergang vom paramagnetischen Isolator zum unkonventionellen Metall wird als ein von Elektron-Elektron-Wechselwirkung getriebener Mott-Übergang angesehen [12]. Unkonventionelle metallische Eigenschaften werden in der optischen Leitfähigkeit, NMR-Untersuchungen, der Temperaturabhängigkeit des Widerstands usw. beobachtet [12]. Bei Erhöhung des Drucks auf 10kbar wird bei allen Temperaturen konventionelles metallisches Verhalten wiederhergestellt.

2.1.2 Das Dimer-Modell

Abb. 2.2 zeigt den Weg von der räumlichen Struktur der κ -(ET)₂X zur Modellierung einer Leitungsschicht am Beispiel von X = Cu(SCN)₂, beginnend mit der Seitenansicht der Einheitszelle (EZ) in Abb. 2.2(a). Die planaren ET-Moleküle liegen entlang der *a*-Richtung. Die ET-Ebenen werden von isolierenden Anionen Cu(SCN)₂ getrennt. In der Aufsicht auf eine ET-Ebene in Abb. 2.2(b) wird deutlich, daß jeweils zwei ET-Moleküle nahezu parallel zueinander liegen. Sie bilden ein Dimer. Die EZ enthält zwei Dimere. Die Dimere sind um ca. 90° gegeneinander und alle Dimere um etwa 45° gegen die Achsen der EZ gedreht. Bandstruktur-Rechnungen für einige Vertreter der κ -(ET)₂X (siehe [12]) zeigen, daß das Intradimer-Transferintegral t_{b1} stets mehr als doppelt so groß ist wie die Interdimer-Integrale. Die bindenden und antibindenden Dimer-Orbitale sind daher um ca. $2t_{b1}$ getrennt, weshalb eine Mischung zwischen ihnen vernachlässigt und das Interdimer-Hüpfen als Störung betrachtet werden kann.

Abb. 2.2(c) zeigt die Fermifläche einer Bandstruktur-Rechnung in Hückel-Näherung [88] und Abb. 2.2(d) wiederholt schematisch den räumlichen Aufbau der ET-Paare. Eine geringfügige Nichtäquivalenz der Dimer-Plätze in der EZ führt zur Aufspaltung der Fermifläche in zwei quasi-eindimensionale

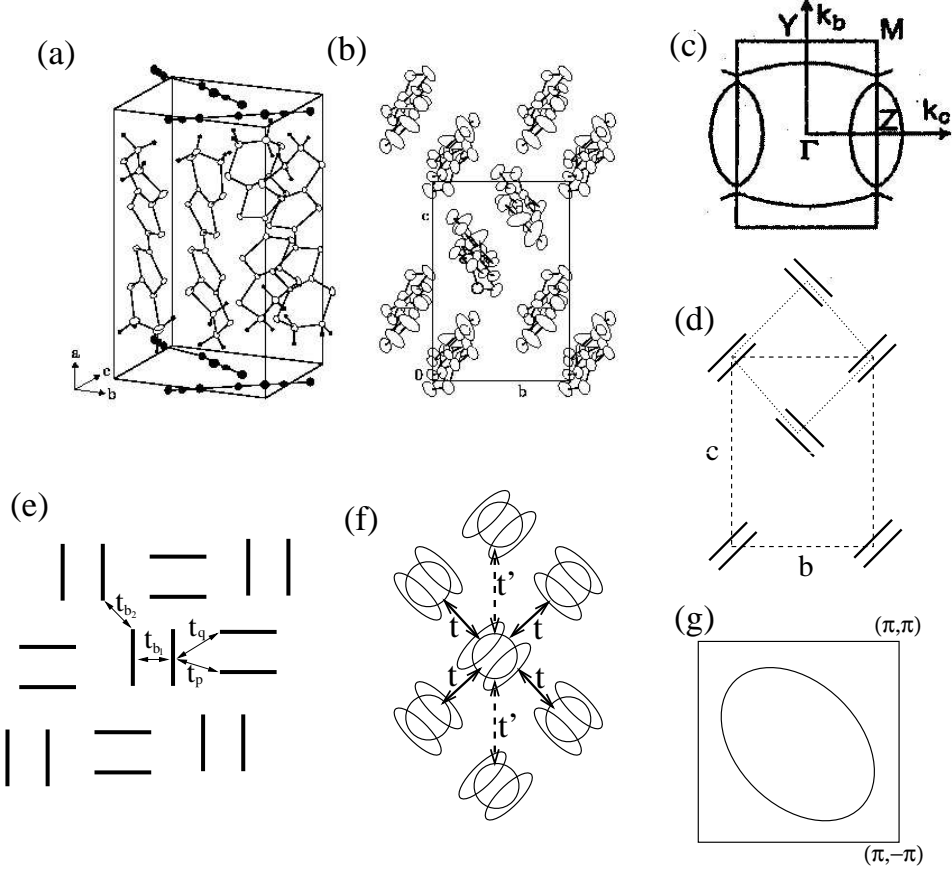


Abbildung 2.2: Von der räumlichen Struktur zum Dimer-Modell am Beispiel von $\kappa - (\text{ET})_2\text{Cu}(\text{SCN})_2$. (a) Seitenansicht der Einheitszelle (EZ). Die Atome der ET-Moleküle sind hell dargestellt, die der $\text{Cu}(\text{SCN})_2$ -Anionen dunkel. (b) Aufsicht auf dieselbe ET-Molekülebene ((a) und (b) nach [87]), (c) entsprechende Fermiflächen einer Bandstruktur-Rechnung [88]. Aufgrund einer geringfügigen Nichtäquivalenz der Dimer-Positionen ist die Fermifläche in zwei quasi-eindimensionale Bänder und zwei zweidimensionale Taschen aufgespalten. (d) Schematische Darstellung der Dimer-Positionen entsprechend der Aufsicht (b). Bei Vernachlässigung der nichtäquivalenten Positionen verkleinert sich die EZ von der gestrichelten zur gepunkteten und die Lücke zwischen den Teilen der Fermifläche schließt sich [35]. (e) Intra- und Interdimer-Transferintegrale in der verkleinerten EZ nach [12]. (f) Im Dimer-Modell nach [5] werden die Transferintegrale zu t und t' zusammengefaßt. Hier bezeichnen Ellipsen die Aufsicht auf ein ET-Molekül und Kreise Dimere. (g) Die Tight-Binding Fermifläche des Dimer-Modells entspricht der Fermifläche aus (c) mit geschlossener Lücke in der vergrößerten und um 45° gedrehten BZ. Nähere Erläuterungen im Text.

Bänder und zwei quasi-zweidimensionale Taschen. Die in Abb. 2.2(c) dargestellte Topologie der Fermifläche ist mit de Haas-van Alphen-, Shubnikov-de Haas- und Zyklotronresonanz-Experimenten eingehend untersucht worden [76, 81, 89]. Die Messungen zeigen die Existenz einer wohldefinierten Fermifläche und Quasiteilchen-Anregungen in Übereinstimmung mit der Fermiflüssigkeitstheorie. Es existieren einige Tight-Binding Parametrisierungen der zweigeteilten Fermifläche [88–91], deren Name *effektives Dimer-Modell* nicht zu verwechseln ist mit dem hier verwendeten Dimer-Modell nach [5]. Aus den nichtäquivalenten Plätzen ergeben sich zwei Überlapp-Integrale, deren Werte sich um weniger als 10% unterscheiden [89]. Vernachlässigt man diesen Unterschied, so reduziert sich die in Abb. 2.2(d) dargestellte EZ von der gestrichelten zur gepunkteten mit einem Dimer pro EZ.

Mit der oben erwähnten Dimerisierung können sich die folgenden Betrachtungen auf die Dynamik des antibindenden Dimerbandes beschränken. In Abb. 2.2(e) sind die dominierenden Interdimer-Transferintegrale dargestellt. Im hier verwendeten Dimer-Modell nach [5] (siehe auch [92–94]) werden die Hüpfintegrale zwischen den Molekülen verschiedener Dimere t_{b2} , t_p und t_q zu den Interdimer-Hüpfintegralen $t = t_{b2}/2$ und $t' = (t_p + t_q)/2$ zusammengefaßt. Mit jeweils sechs Nachbarn haben die Dimere die Koordinationszahl des Dreieckgitters.

Abb. 2.2(f) faßt die Interdimer-Hüpfintegrale zusammen und Abb. 2.2(g) zeigt die entsprechende Tight-Binding Fermifläche. Sie entspricht der Fermifläche aus Abb. 2.2(c) mit geschlossenen Lücken zwischen Bändern und Taschen. Verglichen mit Abb. 2.2(c) ist die Fermifläche auf der um 45° gedrehten und vergrößerten BZ der kleineren EZ in Abb. 2.2(d) dargestellt.

Obgleich das hier verwendete Dimer-Modell gegenüber der experimentellen Bandstruktur vereinfacht ist, wird sich zeigen, daß es wesentliche Merkmale der κ -(ET)₂X reproduziert.

Das Leitungsband der organischen Metalle wird als halb gefüllt angenommen (siehe Abschnitt 2.3.2). Die Abschätzung von t und t' mit der Energie des höchsten besetzten Molekülorbitals (*Highest Occupied Molecular Orbital*, HOMO) $E = -10\text{eV}$ und den Überlapp-Integralen s zwischen benachbarten ET-Molekülen über $t = Es$ [88] stimmt mit den Ergebnissen der oben erwähnten quantenchemischen Rechnungen überein. Es ergibt sich

$t \approx -52\text{meV}$, das Hüpfintegral t' variiert je nach Rechnung und Wahl des Anions X zwischen $0.6t$ und $0.9t$. Als Ausgangspunkt wird hier der in [5] gefundene Wert $t' = 0.8t$ verwendet. Die maximale kritische Temperatur der Supraleitung bei Umgebungsdruck von $\text{X}=\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$ ist damit $T_c = 12.5\text{K} = 0.02t$.

Die Abstoßung zweier Elektronen auf einem einzelnen Dimer wird im Festkörper durch die Abschirmung von 4–5eV auf $U_0 \sim 1\text{eV}$ reduziert. Damit

ergibt sich die effektive Hubbard-Abstoßung zu $U \sim 4-6t \sim 0.3\text{eV}$. Dieser Wert ist von der Größenordnung der Bandbreite $W \sim 9t$ und unterstreicht so die Relevanz von Elektronenkorrelationen in diesem Modell.

Diese Abschätzung der Hubbard-Abstoßung im Dimer-Modell der organischen Metalle $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ wird in den Abschnitten 4.3.4 und 5.3.3 anhand eines Vergleichs der temperaturabhängigen Selbstenergie und der optischen Leitfähigkeit mit experimentellen Beobachtungen diskutiert.

2.2 Das Natrium-Kobalt-Oxyhydrat

Eine weitere Realisierung eines Dreieckgitters bietet die Verbindung $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ mit $x \approx 0.35$ und $y \approx 1.3$, bei der in 2003 Supraleitung mit einer kritischen Temperatur von $T_c = 4.5\text{K}$ gefunden wurde [13]. Die anormalen Transporteigenschaften im normalleitenden Zustand und die Typ II Supraleitung werden auf starke elektronische Korrelationen in diesem Natrium-Kobalt-Oxyhydrat zurückgeführt [14–16, 37, 49, 50, 60, 95]. Ebenso wie die Hochtemperatur-Supraleiter werden die Kobaltate als elektron-dotierte Mott-Isolatoren mit einem unkonventionellen Mechanismus der Supraleitung angesehen (vgl. z.B. [13, 14]).

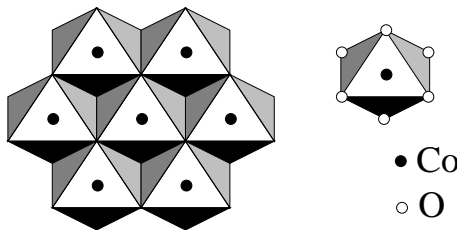


Abbildung 2.3: Räumliche Struktur einer CoO_2 -Ebene. Im Zentrum der aneinanderliegenden Sauerstoff-Oktaeder befindet sich jeweils ein Kobalt-Atom. Die Kobalt-Atome bilden ein Dreiecksgitter.

Die Verbindung besteht aus zweidimensionalen CoO_2 -Schichten, die getrennt werden von isolierenden Na^+ - und H_2O -Schichten. Ihre Raumgruppe ist $\text{P6}_3/\text{mmc}$. Die Co und O Atome bilden die in Abb. 2.3 dargestellten CoO_2 -Ebenen. Eine Ebene besteht aus Sauerstoff-Oktaedern, in deren Mitte sich jeweils ein Kobalt-Atom befindet. Somit bilden die Kobalt-Atome das oben genannte Dreiecksgitter.

Gegenüber der metallischen Ausgangsverbindung NaCo_2O_4 bewirkt die gleichzeitige Entfernung von Na^+ -Ionen und Einbringen von Wasser in die Gitterstruktur nahezu eine Verdopplung der zu der CoO_2 -Schicht senkrechten Gitterkonstante c . Die Messung einer Erniedrigung von T_c mit erhöhtem Druck [96] legt nahe, daß die Zunahme des zweidimensionalen Charakters gegenüber der Ausgangsverbindung ein Baustein für den Mechanismus der Supraleitung

ist. In $\text{Na}_{0.35}\text{CoO}_2 \cdot 1.3\text{H}_2\text{O}$ schirmen dabei je zwei H_2O -Schichten eine Na-Schicht ab. Ein Vergleich mit $\text{Na}_{0.35}\text{CoO}_2 \cdot 0.7\text{H}_2\text{O}$, welches eine gemischte Na- und H_2O -Schicht aufweist und keine Supraleitung zeigt, unterstreicht die Bedeutung des Wassergehalts [97–101].

Die Entfernung von Na^+ -Ionen führt weiterhin zu einer Elektronendotierung der CoO_2 -Ebene. In Analogie zu den Kuprat-Supraleitern kann

$\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ als ein elektrondotiertes System eines $S = 1/2$ Co^{4+} -Gitters mit der Elektronendichte x pro Co-Atom aufgefaßt werden. Bei Variation des Natriumgehalts weist die Sprungtemperatur T_c bei der optimalen Elektronendotierung $x = 0.3$ ein Maximum auf. Die supraleitende Phase im $x - T$ Phasendiagramm hat eine von den lochdotierten Kuprat-Supraleitern bekannte Form [20].

Da die Modifikation von NaCo_2O_4 zu $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ im wesentlichen die Bereiche zwischen den CoO_2 -Schichten betrifft, ist zu vermuten, daß die Bandstruktur des NaCo_2O_4 auch für die supraleitende Verbindung relevant ist. Bandstrukturechnungen an NaCo_2O_4 in Lokaler-Dichte-Approximation (LDA) [59] zeigen eine deutliche Trennung des Sauerstoff $2p$ - und Kobalt $3d$ -Bandes. Eine Kristallfeld-Aufspaltung teilt letzteres nochmal in eine t_{2g} - und e_g -Mannigfaltigkeit. Bei den Zuständen der t_{2g} -Mannigfaltigkeit nahe der Fermi-Energie dominiert der a_{1g} -Charakter der oberen zwei Bänder. In [59] wird die Aufspaltung auf zwei a_{1g} -Bänder mit einer rhomboedrischen Verzerrung der Sauerstoff-Oktaeder begründet. Die Herkunft der Bandaufspaltung wird allerdings kontrovers diskutiert [102, 103].

Erste Messungen der winkelaufgelösten Photoemission (ARPES) an den Ausgangsverbindungen Na_xCoO_2 mit $x = 0.7$ [104] bzw. $x = 0.6$ [103] bestätigen die hexagonale Form der Fermifläche sowie die Anwesenheit starker elektronischer Korrelationen.

Die Breite der $a_{1g} - t_{2g}$ -Subbänder, bestimmt aus der LDA-Bandstruktur, beträgt $W = 570\text{meV}$. Mit der Tight-Binding Dispersion des isotropen Dreieckgitters $W = 9t$ ergibt sich für das Hüpfmatrixelement $t \approx 63\text{meV}$. Damit entspricht die kritische Temperatur der Supraleitung $T_c = 4.5\text{K} = 0.0063t$. Photoemissionsexperimente deuten auf eine effektive Hubbard-Abstoßung von $5\text{--}8\text{eV}$ [59] hin, so daß für $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ der Fall $U \gg t$ vermutet wird.

Die ursprüngliche Formulierung des *Resonating Valence Bond* (RVB) Zustands auf dem Dreieckgitter [105, 106], zusammen mit der Schätzung $U \gg W$, haben zahlreiche Untersuchungen dieser Verbindung im Rahmen von $t - J$ Modellen motiviert [15–18]. Das $t - J$ Modell beschreibt den Limes starker Kopplung, in dem keine doppelt besetzten Plätze auftreten.

Ein Schwerpunkt ist dabei die Frage nach der Symmetrie des Ordnungsparameters der Supraleitung. Es wird f -Wellen- [38], d -Wellen- [15], $d_{x^2-y^2} + id_{xy}$ -

Wellen- [16, 18] (mit Brechung der Zeitumkehrinvarianz), Spin-Triplett- [37] und Triplett-Supraleitung [107] vorgeschlagen.

Offenbar ist auch bei dem Natrium-Kobalt-Oxyhydrat das Verständnis der elektronischen Eigenschaften im normalleitenden Zustand ein Schlüssel zur Erklärung der Supraleitung. Ein einfaches Modell zur Untersuchung des Leitungsbands ist das Ein-Band Hubbard-Modell auf dem isotropen Dreieckgitter. Es wird hier in der FLEX-Näherung bis zu einer lokalen Abstoßung von $U = 8t$ bei der für $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ relevanten Dotierung betrachtet. Ein Schwerpunkt ist dabei die Berücksichtigung von Hüpfprozessen zu übernächsten Nachbarn mit der Hüpfamplitude t'' , die ein in der LDA-Bandstruktur gefundenes lokales Minimum im Zentrum der BZ modelliert. Die Rolle der Hüpfamplitude t'' wurde kürzlich auch bei der Suche nach f -Wellen-Supraleitung mit Störungstheorie dritter Ordnung für die Gap-Gleichung untersucht [38].

2.3 Beschreibung des Dreieckgitters

Ein wesentliches gemeinsames Strukturmerkmal der oben vorgestellten Materialien ist das anisotrope bzw. isotrope Dreieckgitter der quasi-zweidimensionalen Leitungsschicht. Bevor die Modellierung ihrer elektronischen Eigenschaften mit dem Hubbard-Modell auf dem Dreieckgitter beschrieben wird, soll die zugrundeliegende Gittertopologie im Rahmen der Tight-Binding Näherung untersucht werden.

2.3.1 Das anisotrope Dreieckgitter

Die hier verwendete Topologie des anisotropen Dreieckgitters ist in Abb. 2.4 dargestellt. Auf diesem Gitter ergibt sich die Tight-Binding Dispersion zu

$$\begin{aligned} \epsilon_{\mathbf{k}}^0 = & -2t (\cos k_x + \cos k_y) - 2t' \cos(k_x + k_y) \\ & - 2t'' (\cos(-k_x + k_y) + \cos(k_x + 2k_y) + \cos(2k_x + k_y)) . \end{aligned} \quad (2.1)$$

Hierbei bezeichnet t die Hüpfamplitude nächster Nachbarn auf dem Quadratgitter, t' die Hüpfamplitude entlang einer diagonalen Richtung und t'' die Hüpfamplitude übernächster Nachbarn auf dem isotropen Dreieckgitter. Der Fall $t'' \neq 0$ wird ausschließlich für das isotrope Dreieckgitter $t' = t$ in Abschnitt 4.7 betrachtet und kann damit in der folgenden Diskussion von t' vernachlässigt werden. Für eine konsistente Bezeichnung wird das Modell des

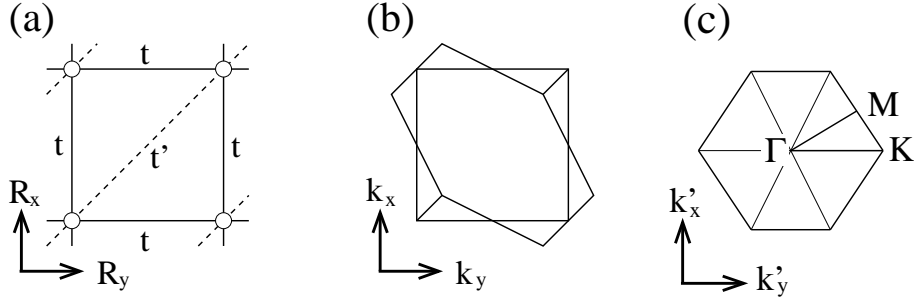


Abbildung 2.4: Das anisotrope Dreieckgitter. (a) Im Ortsraum verbindet das Hüpfelement t nächste Nachbarn auf dem Quadratgitter und t' übernächste Nachbarn in *eine* diagonale Richtung. (b) Die gestreckte hexagonale BZ des isotropen Dreieckgitters für $t' = t$ im Impulsraum. (c) In der auf die Topologie des Dreieckgitters transformierten BZ (siehe Text) ist das irreduzible Dreieck $\Gamma - K - M$ hervorgehoben.

isotropen Dreieckgitters mit Übernächster-Nachbar-Wechselwirkung $t-t''-U$ Modell genannt.

Im Fall $t' = t$ ist das in Abb. 2.4(a) dargestellte Gitter topologisch äquivalent zum isotropen Dreieckgitter. Abb. 2.4(b) zeigt die hexagonale BZ des Dreieckgitters mit der entsprechenden Drehung und Streckung in der Topologie des Quadratgitters. Die Quadratgitter-Darstellung ist über $k'_x = k_x + k_y$ und $k'_y = \frac{1}{\sqrt{3}}(k_y - k_x)$ mit der hexagonalen BZ in Abb. 2.4(c) verbunden. Mit einer Vergrößerung der quadratischen EZ und entsprechender Anpassung der diagonalen Kopplungen kann analog zum Dreieckgitter auch der Fall des Kagomé-Gitters betrachtet werden [108].

Die diagonale Kopplung t' interpoliert kontinuierlich zwischen dem Quadratgitter und dem isotropen Dreieckgitter. Bei verschwindendem t' liegt das von den Kupraten bekannte $t - U$ Modell auf dem Quadratgitter vor. Bei halber Füllung wird das System aufgrund von perfektem Nesting für das unkorrelierte Metall bei beliebig kleiner Hubbard-Abstoßung U instabil gegenüber antiferromagnetischer Ordnung. Für $U > 0$ ist es ein Mott-Isolator.

Mit wachsendem t' wird geometrische Frustration in das System eingeführt. Bei $t' = t$ ist die topologische Äquivalenz zum isotropen Dreieckgitter erreicht. Die organischen Verbindungen κ -(ET)₂X werden also mit $t' \sim 0.8t$ auf einem anisotropen Dreieckgitter beschrieben.

Bei weiterer Erhöhung der diagonalen Kopplung bis $t' \gg t$ liegen mit t schwach gekoppelte eindimensionale Ketten vor.

2.3.2 Das Ein-Band Hubbard-Modell

Die starke Dimerisierung von je zwei ET-Molekülen ermöglicht die Beschreibung einer Leitungsebene der organischen Metalle mit einem Ein-Band Hubbard-Modell.

Betrachtet werden dabei die höchsten besetzten π -Molekülorbitale. Ihre Lage senkrecht zur Molekülebene sorgt mittels großen Orbitalüberlapps für eine hohe Beweglichkeit der Ladungsträger.

Jedes neutrale ET-Molekül hat ein mit zwei Elektronen besetztes HOMO. Der Ladungstransfer an den Akzeptor X reduziert die Füllung des höchsten besetzten Dimerbands auf 3/4. Die Dimerisierung teilt das Band in ein voll besetztes unteres und ein halb gefülltes oberes Hubbard-Band. Die Anregungen des halb gefüllten Leitungsbands werden mit einem Ein-Band Hubbard-Modell betrachtet.

Der Hamilton-Operator des Ein-Band Hubbard-Modells hat die Form

$$H = H_{\text{kin}} + H_{\text{WW}} = \sum_{ij,\sigma} t_{ij} (c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + h.c.) + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} . \quad (2.2)$$

Hierbei hat der Hüpfparameter t_{ij} für nächste Nachbarn auf dem Quadratgitter den Wert t , für übernächste Nachbarn in der diagonalen Vorzugsrichtung t' , für die übernächsten Nachbarn im Fall des isotropen Dreieckgitters t'' und sonst null.

In dieser Arbeit werden über den oben abgeleiteten Fall halber Füllung der κ -(ET)₂X hinaus Systeme bei endlicher Dotierung betrachtet. Diese Erweiterung liefert einen wesentlichen Beitrag zum Verständnis der Elektronenkorrelationen in den organischen Metallen. Weiterhin wird so der Anschluß an die Modellierung des Natrium-Kobalt-Oxyhydrats geschaffen.

Die Anwendbarkeit des vorliegenden Ein-Band Modells in der FLEX-Näherung für die Untersuchung der elektronischen Eigenschaften von Na_xCoO₂ · yH₂O wird von zwei Aspekten eingeschränkt. Zum einen stellt sich die Frage, in wieweit die Ladungsträgerbewegung unter Einbeziehung der Sauerstoff-Oktaeder, die je ein Kobalt-Atom umgeben, oder auf direktem Weg durch Überlapp der Kobalt-Orbitale stattfindet [18]. Zum anderen führt die Abschätzung der Hubbard-Wechselwirkung in diesem Material $U > W \gg t$ über die Anwendbarkeit der FLEX-Näherung bis $U \leq W$ hinaus.

2.4 Das Hubbard-Modell

Das Hubbard-Modell¹ ist das einfachste Vielteilchen-Modell, das eine sinnvolle Beschreibung der gegenläufigen Tendenzen des delokalisierenden Effekts der kinetischen Energie H_{kin} und des lokalisierenden Effekts elektronischer Korrelationen H_{WW} wiedergibt. Trotz seiner Einfachheit gibt es nur wenige exakte Aussagen zum Hubbard-Modell, die im folgenden kurz besprochen werden.

Das Nagaoka-Theorem [112] besagt, daß für $U \rightarrow \infty$ und $t > 0$ der Grundzustand des Hubbard-Modells bei halber Füllung und einem zusätzlichen Elektron ferromagnetisch ist.² Dieser Grenzfall starker Kopplung ist allerdings weit entfernt von den hier betrachteten Hubbard-Abstoßungen. Da H_{WW} invariant unter allen Symmetrioperationen des Gitters ist, hat der gesamte Hamilton-Operator die volle Impuls- bzw. Ortsraumsymmetrie der kinetischen Energie, die hier durch die Tight-Binding Dispersion festgelegt wird.

Die Spinrotationsinvarianz des Hubbard-Modells wird deutlich, wenn H_{WW} geschrieben wird als

$$H_{\text{WW}} = U \sum_i \left(\frac{n_i}{2} - \frac{2}{3} S_i^2 \right). \quad (2.3)$$

Dabei ist $n_i = n_{i\uparrow} + n_{i\downarrow}$ der lokale Dichteoperator und S_i der lokale Spinoperator, von dem H_{WW} lediglich quadratisch abhängt. Im paramagnetischen Zustand ist die Spinrotationsinvarianz erhalten, die auftretenden Ein- und Zweiteilchengrößen sind spinunabhängig. Da alle Rechnungen in dieser Arbeit in der paramagnetischen Phase ausgeführt werden, kann im folgenden der Spin-Index entfallen.

Ein wesentlicher Unterschied des Dreieckgitters zum bipartiten (antiferromagnetisch geordneten) Quadratgitter ist das Fehlen der Teilchen-Loch-Symmetrie. Auf dem Quadratgitter ist der Hamilton-Operator in Gl. (2.2) bis auf eine additive Konstante, die proportional zur Dotierung ist, invariant unter der Transformation $c_{i\sigma}^\dagger \rightarrow c_{i\sigma}$ und $c_{i\sigma} \rightarrow c_{i\sigma}^\dagger$ bei gleichzeitigem Vorzeichenwechsel der Operatoren eines Untergitters. Auf dem Quadratgitter spielt also das Vorzeichen der Hüpfamplitude keine Rolle.

¹Das Hubbard-Modell ist 1963 unabhängig voneinander von J. Hubbard [109], J. Kanamori [110] und M.C. Gutzwiller [111] vorgeschlagen worden.

²Für $t < 0$ ist der Grundzustand mit einem zusätzlichen Loch ferromagnetisch. Auf einem bipartiten Gitter erweitert die Teilchen-Loch-Symmetrie das Nagaoka-Theorem auf halbe Füllung mit einem zusätzlichen Loch oder Elektron.

Auf dem Dreieckgitter bewirkt die Vertauschung von Teilchen und Löchern einen Vorzeichenwechsel im Hüpfmatrixelement t . Mit $t \rightarrow (-t)$ wird die unrenormierte Dispersion und mit ihr die Zustandsdichte an der Fermi-Energie gespiegelt. Jenseits von halber Füllung verändert die hier asymmetrische Zustandsdichte dabei weiterhin die Dotierung des Systems.

Die Teilchen-Loch-Asymmetrie macht eine Festlegung des Vorzeichens von t notwendig. Die Dispersion der organischen Supraleiter ist lochartig mit einem Maximum des quasi-eindimensionalen Bandes im Zentrum der BZ [76]. Für diese Form der Tight-Binding Dispersion gilt $t < 0$. In dieser Arbeit wird eine Teilchen-Loch-Transformation durchgeführt, so daß in allen Rechnungen $t > 0$ Verwendung findet. Dies erleichtert den Vergleich zu Ergebnissen auf dem Quadratgitter sowie mit denen anderer Autoren bzgl. der κ -(ET)₂X [68–70, 72].

Die zwei $a_{1g} - t_{2g}$ -Bänder der Ausgangsverbindung NaCo₂O₄ nahe der Fermi-Energie sind ebenfalls lochartig mit einem Maximum nahe des Γ -Punktes. In der supraleitenden Verbindung Na_{*x*}CoO₂ · *y*H₂O liegt die optimale Dotierung nahe $x = 0.35$ Elektronen pro Co-Atom. Auch hier wird eine Teilchen-Loch-Transformation zu $t > 0$ verwendet. Der positiven Elektronendotierung des Materials entspricht eine negative Lochdotierung. Die optimale Füllung beträgt hier $n = 0.65$, was einer Dotierung von $\delta = -0.35$ entspricht.

2.5 Grundzustand des Dreieckgitters

Während auf dem Quadratgitter im Limes $T \rightarrow 0$ der antiferromagnetisch geordnete Néel-Grundzustand allgemein akzeptiert ist, sind Angaben über die Ordnung des Grundzustands auf dem Dreieckgitter schwierig.

Die Frage nach langreichweitiger Ordnung auf dem Dreieckgitter im Limes $T \rightarrow 0$ wird mit einem Exkurs zu starker Kopplung mit dem $t - J$ Modell beleuchtet.³

Im klassischen Néel-Zustand auf dem Dreieckgitter bilden drei komplanare Spins mit einem Winkel von je 120° zueinander drei magnetische Untergitter. Im Fall von $S = 1/2$ spielt hingegen geometrische Frustration eine erhebliche Rolle. Auf jeder Dreieck-Plakette kommt auf zwei Singulets aus benachbarten, antiparallel orientierten Spins eine frustrierte Bindung mit zwei parallelen Spins.

Die Destabilisierung der antiferromagnetischen Ordnung durch Frustration auf dem Dreieckgitter führte zu dem Vorschlag des *Resonating Valence Bond*

³Bei halber Füllung entspricht das $t - J$ - dem Heisenberg-Modell.

(RVB) Grundzustands für das $t - J$ Modell [105, 106]. Der RVB Zustand ist eine Spinflüssigkeit aus Singulett-Paaren, die entsprechend keine langreichweitige Ordnung zeigt.

Numerische Untersuchungen des Heisenberg-Modells auf endlichen Systemen zeigen Evidenz für einen Néel-artigen antiferromagnetisch geordneten Grundzustand auch für $S = 1/2$ [21, 22, 113–115]. Im Gegensatz zum klassischen Grundzustand verletzt dieser die Translations- und Spinrotationsinvarianz nicht. Der Ordnungsparameter ist gegenüber dem klassischen Wert auf $\sim 40\%$ reduziert.

Das perfekte Nesting macht das Hubbard-Modell auf dem Quadratgitter bei halber Füllung für jedes $U > 0$ instabil gegenüber einer Mott-Isolator Phase mit antiferromagnetischer Ordnung. Die Beobachtung von antiferromagnetischer Ordnung jenseits von perfektem Nesting im Grenzfall $U \rightarrow \infty$ legt einen Metall-Isolator Übergang auf dem Dreieckgitter bei endlichem kritischen U_c nahe.

Im Phasendiagramm des Hubbard-Modells auf dem Dreieckgitter in Hartree-Fock-Näherung [116] liegen zwischen dem Paramagnetismus bei kleinem U und der antiferromagnetischen 120° -Struktur bei großem U Phasen chiraler Ordnung und einer linearen Spindichtewelle vor [117]. Dies wird qualitativ mit einer *Slave-Boson* Methode bestätigt. Die Phasenübergänge liegen dort zwischen $U_{c1} = 6.68t$ und $U_{c3} = 7.68t$ [118]. Die exakte Diagonalisierung endlicher Systeme zeigt allerdings keine intermediären Phasen sondern einen direkten Übergang vom Paramagnet zum Mott-Isolator bei $U_{MIT} = 12.07t$ [118].

Kapitel 3

Die Fluktuations-Austausch-Näherung

Dem großen Interesse an den organischen Supraleitern und dem Natrium-Kobalt-Oxyhydrat folgt eine Vielzahl von Arbeiten zum Hubbard-Modell auf dem Dreieckgitter mit verschiedenen Methoden. So wurden Ein- und Mehrband Hubbard-Modelle auf dem anisotropen und isotropen Dreieckgitter mit Hartree-Fock- (eine Übersicht gibt [119]), einer symmetrisierten *mean-field*-Näherung [120], in der *Random Phase Approximation* (RPA) [121], mit Quanten-Monte-Carlo- [68, 122] und Renormierungsgruppen-Analysen [19, 72] untersucht.

In dieser Arbeit wird das Ein-Band Hubbard-Modell mit der Methode der Fluktuations-Austausch-Näherung (FLEX) behandelt. Diese von Bickers und Scalapino [58, 123] zum ersten Mal auf das Hubbard-Modell angewendete diagrammatische Näherung ist erhaltend nach Kadanoff und Baym [78, 79]. Sie erfüllt per Konstruktion die Teilchenzahl-, Impuls- und Energieerhaltung. Die Selbstenergie Σ wird als Funktionalableitung der freien Energie Φ (erzeugendes Funktional) nach der vollständig renormierten Greensfunktion G über $\Sigma(1, 1') = \frac{\delta\Phi}{\delta G(1', 1)}$ erhalten. Dabei bezeichnen 1 und $1'$ jeweils einen Satz von Impuls- und Frequenzvariablen, in $D = 2$ also $1 = (k_x, k_y, i\omega_n)$. Die diagrammatische Form des erzeugenden Funktionals Φ besteht aus Skelettgraphen mit vollständig renormierten Greensfunktionen G und der lokalen Hubbard-Wechselwirkung U .

Die Diagramme von Φ berücksichtigen den Austausch von Fluktuationen in den möglichen Zwei-Teilchen Kanälen, für das Hubbard-Modell also Teilchen-Teilchen-, Dichte-Dichte- sowie transversale und longitudinale Spinfluktuationen. In erster Ordnung bewirkt der Beitrag der Wechselwirkung eine triviale Energieverschiebung, die in das chemische Potential μ aufgenommen wird.

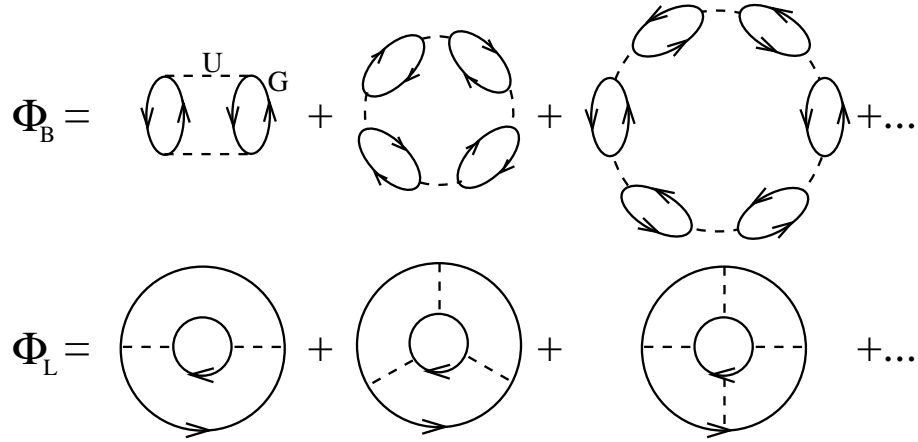


Abbildung 3.1: Diagrammatische Entwicklung des erzeugenden Funktionals $\Phi = \Phi_B + \Phi_L$ in Blasen- Φ_B und Leiterdiagramme Φ_L . Durchgezogene Linien stellen die renormierten Greensfunktionen G dar, gestrichelte die Hubbard-Abstoßung U . Der sowohl in Φ_B als auch in Φ_L auftretende Beitrag zweiter Ordnung wird einmal subtrahiert, um doppelte Zählung zu vermeiden.

Auf dem Quadratgitter ist das $t - U$ Modell bei $T = 0$, halber Füllung und beliebig kleiner Hubbard-Abstoßung U instabil gegenüber antiferromagnetischer (AFM) Ordnung. Im $t - t' - U$ Modell verschiebt sich dort die entsprechende Singularität im transversalen Spinkanal zu endlichem U . Die in Abschnitt 2 genannten experimentellen Ergebnisse zu den organischen Supraleitern und zum Natrium-Kobalt-Oxyhydrat legen die Anwesenheit starker AFM Spinfluktuationen auch auf dem (an)isotropen Dreieckgitter nahe.

Tatsächlich erweist sich die Berücksichtigung des transversalen Spinkanal mit den Diagrammen aus Φ_L (vgl. Abb. 3.1) als wesentlich für die Beschreibung der (an)isotropen Dreieckgitter in der FLEX-Näherung.

In [66] wurde auf dem Quadratgitter gezeigt, daß die Berücksichtigung des Teilchen-Teilchen-Kanals keine wesentlichen qualitativen und quantitativen Veränderungen bewirkt. Weiterhin übersteigen dort die Fluktuationen im transversalen Spinkanal Φ_L diejenigen in Φ_B deutlich. Die Dominanz der Spinfluktuationen ist auf dem Dreieckgitter nochmals verstärkt. Diese Analogie erlaubt die Vernachlässigung des Teilchen-Teilchen-Kanals in den folgenden Rechnungen.

Neben den Erhaltungssätzen für Ein-Teilchen-Größen liefert die FLEX-Näherung prinzipiell auch Vertexkorrekturen für Zwei-Teilchen-Erhaltungssätze, indem die Zwei-Teilchen-Korrelationsfunktionen ebenfalls als Funktionalableitung der Selbstenergie nach der renormierten Greensfunktion bestimmt

werden. Bei der Berechnung der optischen Leitfähigkeit in Kapitel 5 konnte der damit verbundene erhebliche numerische Aufwand mit einer genäherten Vertexkorrektur umgangen werden, die die Teilchenzahlerhaltung gewährleistet.

Die im folgenden Abschnitt vorgestellten FLEX-Gleichungen werden auf einem endlichen zweidimensionalen Gitter selbstkonsistent gelöst.

3.1 Die FLEX Selbstkonsistenz-Gleichungen

Die Funktionalableitung des erzeugenden Funktional Φ nach der renormierten Greensfunktion G zur Bestimmung der Selbstenergie entspricht der Entfernung einer Teilchenlinie aus den in Abb. 3.1 dargestellten Diagrammen. Die Selbstenergie kann damit geschrieben werden als

$$\Sigma_{\mathbf{k}}(i\omega_n) = \frac{T}{N} \sum_{\mathbf{k}', n'} G_{\mathbf{k}'}(i\omega_{n'}) V_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'}(i\omega_n - i\omega_{n'}) , \quad (3.1)$$

wobei die Wechselwirkung $V_{\mathbf{q}}(i\nu_{n-n'})$ Beiträge von Leiter- und Blasendiagrammen umfaßt. Hierbei sind $i\omega_n = i\pi T(2n+1)$ fermionische und $i\nu_m = i\pi T 2m$ bosonische Matsubara-Frequenzen mit den ganzen Zahlen m und n . Die geometrischen Reihen dieser Diagramme werden in den T -Matrizen der Streukanäle

$$T_{sf, \mathbf{q}}(i\nu_m) = \frac{3}{2} \frac{\chi_{\mathbf{q}}^0(i\nu_m)}{1 - U\chi_{\mathbf{q}}^0(i\nu_m)} \quad (3.2)$$

$$T_{\rho\rho, \mathbf{q}}(i\nu_m) = \frac{1}{2} \frac{\chi_{\mathbf{q}}^0(i\nu_m)}{1 + U\chi_{\mathbf{q}}^0(i\nu_m)} \quad (3.3)$$

zusammengefaßt. Dabei bezeichnet T_{sf} die Streuung an transversalen Spinfluktuationen (Diagramme aus Φ_L) und $T_{\rho\rho}$ die Streuung an longitudinalen Spin- und Dichtefluktuationen (Diagramme aus Φ_B). In beiden T -Matrizen erscheint die einfache Teilchen-Loch-Blase

$$\chi_{\mathbf{q}}^0(i\nu_m) = -\frac{T}{N} \sum_{\mathbf{k}, n} G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}(i\omega_n + i\nu_m) G_{\mathbf{k}}(i\omega_n) . \quad (3.4)$$

Beim Zusammenfügen der effektiven Wechselwirkung

$$V_{\mathbf{q}}(i\nu_m) = U^2 \left(T_{sf, \mathbf{q}}(i\nu_m) + T_{\rho\rho, \mathbf{q}}(i\nu_m) - \chi_{\mathbf{q}}^0(i\nu_m) \right) \quad (3.5)$$

wird der in beiden T -Matrizen identische Term zweiter Ordnung einmal subtrahiert, um Mehrfachzählung zu vermeiden.

Die Dyson-Gleichung

$$G_{\mathbf{k}}(i\omega_n) = \frac{1}{i\omega_n - \epsilon_{\mathbf{k}}^0 + \mu - \Sigma_{\mathbf{k}}(i\omega_n)} \quad (3.6)$$

macht die Gleichungen (3.1)-(3.6) zu einem geschlossenen Gleichungssystem, welches selbstkonsistent gelöst wird.

Es bietet sich an, die Gleichungen in den Räumen zu lösen, in denen sie lokal sind. Da die Gleichungen (3.1) und (3.4) lokal im Orts- und Zeitraum, die Gleichungen (3.5) und (3.6) aber lokal im Impuls- und Frequenzraum sind, werden die jeweiligen Größen mit schnellen Fourier-Transformationen (FFT) zwischen ω und t sowie \mathbf{k} und \mathbf{R} transformiert. Gegenüber diskreten Fourier-Transformationen bringt die Reduktion der Operationen von $\mathcal{O}(N^2)$ auf $\mathcal{O}(N \log N)$ einen erheblichen Geschwindigkeitsvorteil. Allein für die $\omega \leftrightarrow t$ Transformationen mit den hier verwendeten 4096 Frequenzpunkten erhöht die FFT die Geschwindigkeit um einen Faktor von ≈ 500 . Diesem Vorteil auch bei den $\mathbf{k} \leftrightarrow \mathbf{R}$ Transformationen steht die Notwendigkeit von 2^m äquidistanten Stützstellen in k_x, k_y und ω gegenüber.

3.2 Die γ -Contour

Die in der FLEX-Näherung am feinsten aufzulösende Struktur ist der Paramagnon-Peak in der Spinfluktuations-Streumatrix T_{sf} . Er bestimmt die notwendige Stützstellendichte im Impuls- und Frequenzraum. Dabei bietet die Frustration in der Topologie des Dreieckgitters gegenüber dem Quadratgitter den Vorteil eines deutlichen Abstands zur Instabilität gegenüber einer Spin-Dichte Welle. Aufgrund des Abstands zur entsprechenden Singularität in der T_{sf} -Matrix hat der statische Spin-Strukturfaktor $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ lediglich $\approx 1/10$ des Wertes auf dem Quadratgitter. Die Energieskala der Spinfluktuationen ω_{sf} , gegeben durch die Position des Maximums in $\text{Im}T_{sf}(\mathbf{q}_{max}, \omega)$ am Impuls \mathbf{q}_{max} des Paramagnon-Peaks, fällt nicht erheblich unter die Temperatur. Diese Eigenschaft ermöglicht wiederum Betrachtungen bis zu einer Stärke der Hubbard-Wechselwirkung von $U \approx W$.

Die Auflösung im Impulsraum ist hier unkritisch. In Anhang C wird gezeigt, daß bei den hier gewählten 64×64 \mathbf{k} -Punkten Finite-Size-Effekte vernachlässigt werden können. Anhand der Frequenzauflösung wird nun der Vorteil des hier verwendeten Verfahrens besprochen.

Die FLEX Selbstkonsistenz-Gleichungen (SK-Gleichungen) sind auf der imaginären Achse formuliert. Es gibt direkte Implementierungen der FLEX SK-

Gleichungen mit Matsubara-Frequenzen sowohl für das Quadrat- [124] als auch das (an)isotrope Dreieckgitter [69, 71]. Dabei ist zum einen die Trunkierung hoher Frequenzen und zum anderen die analytische Fortsetzung der Ergebnisse auf die reelle Achse problematisch [125].

Eine analytische Fortsetzung der Gleichungen (3.1)-(3.6) auf die reelle Achse ($\omega + i0^+$) hätte bei äquidistanten Stützstellen eine unrealistisch hohe Punktdichte zur Folge. Alternative Verfahren mit logarithmischer Stützstellendichte [126, 127] oder einem Renormierungsgruppen-Ansatz mit ebenfalls nichtäquidistanter Stützstellendichte [62, 128] sind zum einen mit erheblichem Programmieraufwand verbunden und müssen zum anderen auf den Geschwindigkeitsvorteil der FFT verzichten.

Ein eleganter Ausweg ist eine analytische Fortsetzung der Gleichungen (3.1)-(3.6) auf eine Integrationscontour mit endlichem Abstand $i\gamma$ zur reellen Achse. In dieser Arbeit wird das von J. Schmalian et al vorgeschlagene Verfahren [129] auf der γ -Contour eingesetzt.

Die SK-Gleichungen werden auf der um den endlichen Abstand $i\gamma$ von der reellen Achse in die obere Halbebene verschobenen Achse $\omega + i\gamma$ gelöst. Dabei wird γ zwischen dem Ursprung und $i\omega_1$ gewählt, so daß die Contour alle Frequenzpunkte umschließt. Der endliche Abstand zur reellen Achse verbreitert die dort scharfen Strukturen, so daß sie mit dem verwendeten Stützstellenabstand von $\Delta\omega = 0.0146t$ hinreichend aufgelöst werden. Die Lösung der SK-Gleichungen wird abschließend mit einer Padé-Approximation von $\omega + i\gamma$ zur reellen Achse $\omega + i0^+$ unproblematisch analytisch fortgesetzt (siehe Anhang A.3).

Abb. 3.2 zeigt am Beispiel der stärksten hier untersuchten Spinfluktuationen das Anwachsen von $\text{Im}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega)$ bei Annäherung an den Paramagnon-Peak sowie die Auswirkungen der analytischen Fortsetzung. Gegenüber dem Quadratgitter ist der Paramagnon-Peak auf den (an)isotropen Dreieckgittern deutlich unterdrückt. Am kommensurablen Impuls des Quadratgitters $\mathbf{Q}_{SQL} = (\pi, \pi)$ hat das Maximum von $\text{Im}T_{sf}(\mathbf{Q}_{SQL}, \omega + i0^+)$ einen Abstand von $\sim 2.5\Delta\omega$ zum Ursprung und ist entsprechend gut aufgelöst. Die analytische Fortsetzung verschiebt die Spinfluktationsfrequenz ω_{sf} in Abb. 3.2 um ca. 40% zu kleinen Frequenzen. Dieser Effekt ist auf dem Quadratgitter nochmals verstärkt. Dort befindet sich die Spinfluktationsfrequenz auf der γ -Contour bei kleinen Temperaturen in einem Abstand von 1 bis 2 $\Delta\omega$ zum Ursprung und die analytische Fortsetzung verschiebt sie auf $\approx 1/10\Delta\omega$, also unterhalb von T [66]. Auf einer Contour mit infinitesimalem Abstand zur reellen Achse wäre hier eine Erhöhung der Stützstellendichte um einen Faktor > 10 notwendig. Die FLEX SK-Gleichungen auf der γ -Contour werden in Anhang A.1 vorgestellt.

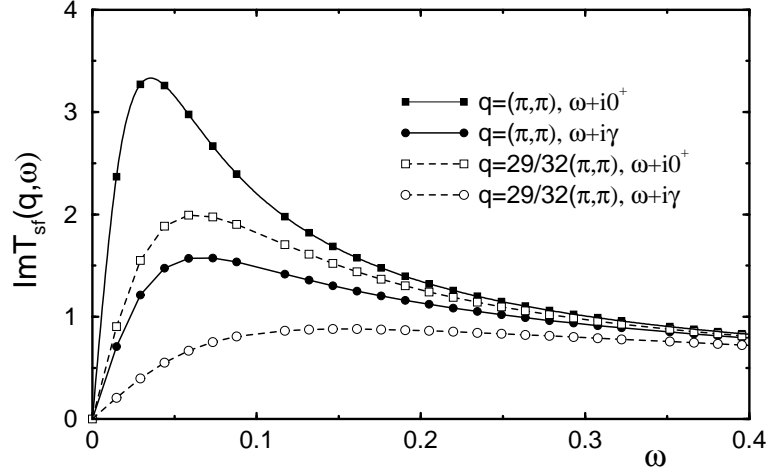


Abbildung 3.2: $\text{Im}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega)$ nahe und am kommensurablen Wellenvektor des Quadratgitters $\mathbf{Q}_{SQL} = (\pi, \pi)$ für $t' = 0.7t$, $T = 0.025t$, $U = 6t$, $\delta = +0.1$ auf der γ -Contour sowie analytisch fortgesetzt auf die reelle Achse. Kreise und Quadrate bezeichnen jeweils die Stützstellen. Die obere Kurve ist zur Verdeutlichung der Peakverschiebung bei der analytischen Fortsetzung mit einer Stützstellendichte von 100 Punkten pro $\Delta\omega = 0.1t$ Spline-interpoliert.

3.3 Bemerkungen zur FLEX-Näherung

Als störungstheoretischer Ansatz ist die FLEX-Näherung exakt bis zur dritten Ordnung in der Wechselwirkung. Die Summation über alle Ordnungen von Leiter- und Blasendiagrammen¹ erweitert ihre Gültigkeit bis zum Bereich mittlerer Wechselwirkungsstärke. Hierfür ist sie allerdings keine kontrollierte Näherung mehr. Ein Vergleich mit der exakten Quanten-Monte-Carlo-Methode auf kleinen Gittern zeigt bei $U = 4t$, $T \geq 0.17t$ und nahe des Übergangs zu AFM Ordnung bei halber Füllung überzeugende quantitative Übereinstimmung der Ergebnisse beider Methoden [130].

Weiterhin verletzt die FLEX-Näherung, im Gegensatz z.B. zum nicht selbstkonsistenten RPA-Ansatz auf dem Quadratgitter, das Mermin-Wagner-Theorem [131] nicht, welches in $D = 2$ für $T > 0$ einen Übergang zu langreichweitiger (z.B. AFM) Ordnung durch Brechen einer kontinuierlichen Symmetrie verbietet [66].

In $D \geq 3$ stellen die beiden Diagrammklassen jeweils die führenden Ordnungen im Limes niedriger (Leiterdiagramme Φ_L [132]) und hoher Teilchendichte (Blasendiagramme Φ_B [133]) dar. Für $D = 2$ gibt es allerdings keine äquivalenten Aussagen bzgl. der beiden Grenzfälle.

¹Es wird über hinreichend viele Ordnungen für eine selbstkonsistente Lösung der FLEX-Gleichungen summiert.

Kapitel 4

Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der FLEX-Rechnungen für das Ein-Band Hubbard-Modell auf dem anisotropen und isotropen Dreieckgitter dargestellt und diskutiert. Auf den anisotropen Dreieckgittern wird der Einfluß der diagonalen Kopplung t' , der Dotierung, der Hubbard-Wechselwirkung U und der Temperatur auf die renormierten Systeme untersucht. Ausgangspunkt ist dabei die im Dimer-Modell für die κ -(ET)₂X relevante diagonale Kopplung $t' = 0.8t$ bei halber Füllung. Der Grenzfall des isotropen Dreieckgitters und der erhebliche Abstand zum halb gefüllten Leitungsband bei $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ motivieren eine entsprechende Erweiterung des Parameterbereichs. Bei den Betrachtungen zum isotropen Dreieckgitter liegt ein Schwerpunkt auf dem Vergleich der Modelle mit und ohne Hüpfprozessen zu übernächsten Nachbarn. Die beiden Modelle werden in Abschnitt 4.7 bei fester Temperatur in einem weiten Dotierungsbereich untersucht.

Im folgenden sind alle Energien in Einheiten des Quadratgitter-Hüpfmatrixelements t und relativ zum jeweiligen chemischen Potential μ angegeben. Eigentlich ist die Fermi-Energie ϵ_F nur bei $T = 0$ definiert. Dem üblichen Gebrauch folgend werden hier die Begriffe chemisches Potential und Fermi-Energie auch bei endlichen Temperaturen synonym verwendet. Die Fermifläche ergibt sich damit als Höhenlinie der Dispersion bei $\epsilon_{\mathbf{k}} = 0 \Leftrightarrow \epsilon_F$. Die Rechnungen sind auf einem Impulsraum-Gitter mit 64×64 Stützstellen und 4096 äquidistanten Stützstellen für jeden Impuls im Energiefenster $[-30t, +30t]$ durchgeführt worden. Abweichungen hiervon werden im Text erwähnt.

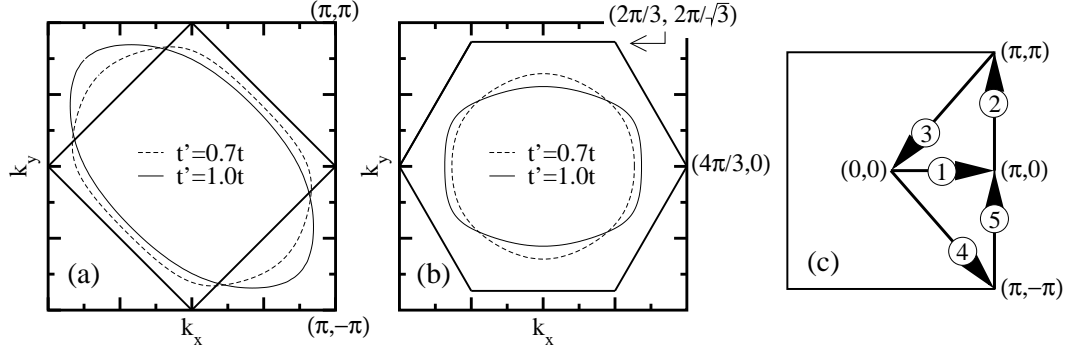


Abbildung 4.1: Fermiflächen für die größte und kleinste hier betrachtete diagonale Kopplung t' bei $T = 0.5t$, $U = 6t$ und halber Füllung $\delta = 0$. Die Darstellung erfolgt zum einen in der Topologie des Quadratgitters (a), zum anderen in der des isotropen Dreieckgitters (b). In (a) ist weiterhin die magnetische BZ des Quadratgitters gezeigt, in (b) die hexagonale BZ des Dreieckgitters. Im folgenden werden impulsabhängige Größen auf dem in (c) skizzierten geschlossenen Weg durch die BZ in der Topologie des Quadratgitters dargestellt.

Die über das chemische Potential μ eingestellte Bandfüllung n wird mit einer Integration über den besetzten Teil der Zustandsdichte

$$n = 2 \int d\omega \sum_{\mathbf{k}} n_F(\omega) A_{\mathbf{k}}(\omega) \quad (4.1)$$

bestimmt. Die Dotierung δ ergibt sich als Abweichung vom halb gefüllten Band $n = 1$ gemäß $\delta = n - 1$, so daß $\delta < 0$ einem weniger und $\delta > 0$ einem mehr als halb gefüllten Band entspricht.

Es stellt sich die Frage, in welcher Gittertopologie die Impulsabhängigkeit der betrachteten Größen darzustellen ist. Im Fall $t' = t$ kann die Äquivalenz des vorliegenden Gitters zum isotropen Dreieckgitter genutzt werden, womit sich der relevante Bereich auf das irreduzible Dreieck aus Abb. 2.4(c) beschränkt. Abb. 4.1 zeigt exemplarisch die Fermiflächen für eine anisotrope diagonale Kopplung $t' = 0.7t$ und die isotrope diagonale Kopplung $t' = t$ in den Topologien des Quadrat- und des isotropen Dreieckgitters. Im Fall $t' = t$ vermittelt die in Abschnitt 2.3 beschriebene Koordinatentransformation zwischen den beiden Darstellungen. Die Darstellung der hexagonalen BZ wird in Abschnitt 4.7 verwendet.

Im Fall der anisotropen Dreieckgitter $t' < t$ ist die Fermifläche in der Topologie des Quadratgitters weniger ellipsoidal, so daß in der Darstellung des

isotropen Dreieckgitters die hexagonale Symmetrie erheblich verletzt wird. Da der Fall $t' = t$ in der Diskussion des anisotropen Dreieckgitters lediglich ein Grenzfall ist, findet bis Abschnitt 4.6 die Diskussion dargestellt in der Quadratgitter-Topologie und im speziellen auf dem in Abb. 4.1(c) skizzierten Pfad statt. Auf dem isotropen Dreieckgitter sind die Teile 1 und 4 bzw. 2 und 5 dieses Pfades identisch.

4.1 Quasiteilchendisersion

Den Ergebnissen zur Quasiteilchendisersion werden eine Beschreibung der Dispersion für eine normale Fermiflüssigkeit und die Eindeutigkeitsproblematik bei der Bestimmung der Dispersion anhand der renormierten Quasiteilchen vorangestellt. Im Anschluß werden die renormierten Dispersionen mit der Tight-Binding Dispersion verglichen und die Abhängigkeit von der Hubbard-Wechselwirkung U , der Temperatur, der Dotierung und der diagonalen Kopplung t' diskutiert.

4.1.1 Quasiteilchen

In einer normalen Fermiflüssigkeit kann die Quasiteilchenenergie eindeutig über die Spektralfunktion $A_{\mathbf{k}}(\omega) = -\frac{1}{\pi} \text{Im} G_{\mathbf{k}}(\omega)$ bestimmt werden. In der Nähe des Fermi-Impulses \mathbf{k}_F zeigt $A_{\mathbf{k}}(\omega)$ einen dominanten und scharfen Quasiteilchenpeak, begleitet von einem im wesentlichen strukturlosen inkohärenten Untergrund. Mit der Dyson-Gleichung hat die Spektralfunktion die Form

$$A_{\mathbf{k}}(\omega) = \frac{-1/\pi \text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}}(\omega)}{\left(\omega - \epsilon_{\mathbf{k}}^0 + \mu - \text{Re}\Sigma_{\mathbf{k}}(\omega)\right)^2 + \left(\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}}(\omega)\right)^2} . \quad (4.2)$$

Die Lage des Peaks entspricht der Quasiteilchenenergie und seine Breite $\Gamma_{\mathbf{k}}$ der inversen Ein-Teilchen-Lebensdauer. Nach Gl. (4.2) wird bei einem konstanten Imaginärteil der Selbstenergie die Spektralfunktion bei der Energie ω maximal, für die der Realteil der Greensfunktion verschwindet. Somit ist die implizite Gleichung

$$\epsilon_{\mathbf{k}} = \epsilon_{\mathbf{k}}^0 - \mu + \text{Re}\Sigma_{\mathbf{k}}(\epsilon_{\mathbf{k}}) , \quad (4.3)$$

die das Verschwinden des Realteils der Greensfunktion beschreibt, eine Möglichkeit zur Bestimmung der impulsabhängigen Quasiteilchenenergie $\epsilon_{\mathbf{k}}$, also der renormierten Dispersion. Eine alternative Bestimmung der Quasiteilchenenergie erfolgt über die Lage des Maximums der Spektralfunktion und führt bei frequenzunabhängiger Selbstenergie zum gleichen Ergebnis wie Gl. (4.3).

Ist $\Sigma_{\mathbf{k}}(\omega)$ näherungsweise frequenzunabhängig, hat die Spektralfunktion am Quasiteilchenpeak die Form einer Lorentz-Funktion

$$A_{\mathbf{k}}(\omega) = \frac{Z_{\mathbf{k}}}{\pi} \frac{\Gamma_{\mathbf{k}}}{(\omega - \epsilon_{\mathbf{k}})^2 + \Gamma_{\mathbf{k}}^2} \quad (4.4)$$

mit der Resonanzfrequenz $\epsilon_{\mathbf{k}}$ und der Halbwertsbreite $\Gamma_{\mathbf{k}}$. Das Quasiteilchengewicht $Z_{\mathbf{k}}$ ergibt sich aus der Näherung des Quasiteilchenpeaks mit einer δ -Funktion im Grenzfall $\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}}(\omega) = 0$

$$\begin{aligned} A_{\mathbf{k}}(\omega) &= \delta(\omega - \epsilon_{\mathbf{k}}^0 + \mu - \Sigma_{\mathbf{k}}(\omega))_{\omega=\epsilon_{\mathbf{k}}} \\ &= \underbrace{\left(\left| 1 - \frac{\partial}{\partial \omega} \Sigma_{\mathbf{k}}(\omega) \right| \right)_{\omega=\epsilon_{\mathbf{k}}}^{-1}}_{Z_{\mathbf{k}}} \delta(\omega - \epsilon_{\mathbf{k}}) . \end{aligned} \quad (4.5)$$

$Z_{\mathbf{k}}$ ist ein Maß für den Anteil der δ -Funktion eines freien Teilchens an den Anregungen des Vielteilchen-Systems. Im Fall des freien Teilchens ist $Z_{\mathbf{k}} = 1$. Weist eine Spektralfunktion spektrales Gewicht jenseits des Quasiteilchenpeaks auf, gilt wegen $\int_{-\infty}^{\infty} A_{\mathbf{k}}(\omega) d\omega = 1$ für das Quasiteilchengewicht $|Z_{\mathbf{k}}| < 1$. Die oben beschriebenen Methoden zur Bestimmung der Quasiteilchen-Energie liefern für $\frac{\partial}{\partial \omega} \Sigma_{\mathbf{k}}(\omega) = 0$ identische Dispersionen. Da in einer Fermiflüssigkeit nahe der Fermi-Energie $\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}}(\omega) \propto \omega^2$ gilt, ist die Frequenzabhängigkeit der Selbstenergie bei $\omega = 0$ hauptsächlich durch deren Realteil gegeben. Ausgedrückt durch das Quasiteilchengewicht kann das obige Kriterium für die Näherung des Quasiteilchenpeaks mit einer Lorentz-Kurve als verbreiterte δ -Funktion nun geschrieben werden als

$$\left. \frac{\partial \text{Re}\Sigma_{\mathbf{k}}(\omega)}{\partial \omega} \right|_{\omega=\epsilon_{\mathbf{k}}} \ll 1 \quad \text{bzw.} \quad 1 - \frac{1}{Z_{\mathbf{k}}} \ll 1 . \quad (4.6)$$

In Abb. 4.2 wird an einem Beispiel ($t' = 0.8t$, $T = 0.05t$, $U = 6t$, $\delta = 0$) für den Impuls $\mathbf{k} = 17/32(\pi, \pi)$ gezeigt, daß gerade oberhalb des Fermi-Impulses (hier: $\mathbf{k}_F = 14/32(\pi, \pi)$) das Kriterium Gl. (4.6) nicht erfüllt wird und entsprechend die beiden Verfahren zur Bestimmung der Quasiteilchenenergie voneinander abweichende Ergebnisse liefern.

Für diese Wahl der Parameter ist die Position des Quasiteilchenpeaks in $\text{Im}G_{\mathbf{k}}(\omega)$ um $0.07t$ kleiner als der Ort der Nullstelle von $\text{Re}G_{\mathbf{k}}(\omega)$.

Wegen der starken Asymmetrie des Quasiteilchenpeaks kann dieser nicht gut mit einer Lorentz-Kurve beschrieben werden. Das Kriterium Gl. (4.6) wird aufgrund der Frequenzabhängigkeit der Selbstenergie nicht erfüllt. Die

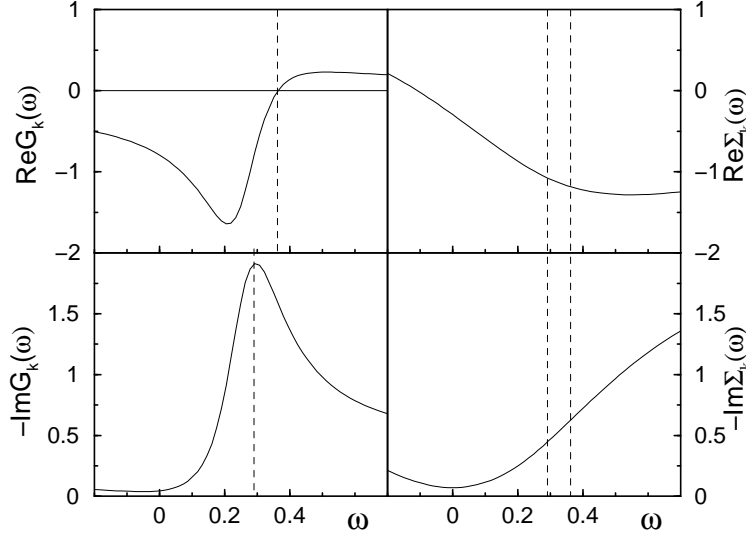


Abbildung 4.2: Vergleich von Real- und Imaginärteil der Greensfunktion und der Selbstenergie für $t' = 0.8t$, $T = 0.05t$, $U = 6t$ und halbe Füllung bei $\mathbf{k} = 17/32(\pi, \pi)$ außerhalb der Fermilinie. Die Fermilinie liegt hier bei $\mathbf{k}_F = 14/32(\pi, \pi)$. In den linken Bildern bezeichnen die senkrechten Hilfslinien die Bestimmung der Quasiteilchenenergie entsprechend Gl. (4.3) (oben) und mit der Position des Maximums in $-\text{Im}G_{\mathbf{k}}(\omega)$ (unten). In den Bildern der Selbstenergie (rechts) wiederholen sich beide Linien der Quasiteilchenenergien. Die mit den beiden Verfahren bestimmten Quasiteilchenenergien weichen in diesem Beispiel deutlich voneinander ab. Die Quasiteilchenenergie kann hier nicht eindeutig angegeben werden.

Beschreibung der Frequenzabhängigkeit der Selbstenergie über deren Realteil ist nur bei der Fermi-Energie zulässig. Ein Vergleich der mit den beiden Verfahren gefundenen Dispersionen zeigt allerdings, daß diese für $\omega \leq \epsilon_F$ gut übereinstimmen und merkliche Abweichungen nur oberhalb der Fermifläche auftreten.

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß der Fehler bei der Bestimmung der Quasiteilchenenergie unterhalb und in der Nähe der Fermi-Energie vernachlässigbar ist. Im folgenden wird die Dispersion mit Gl. (4.3) bestimmt.

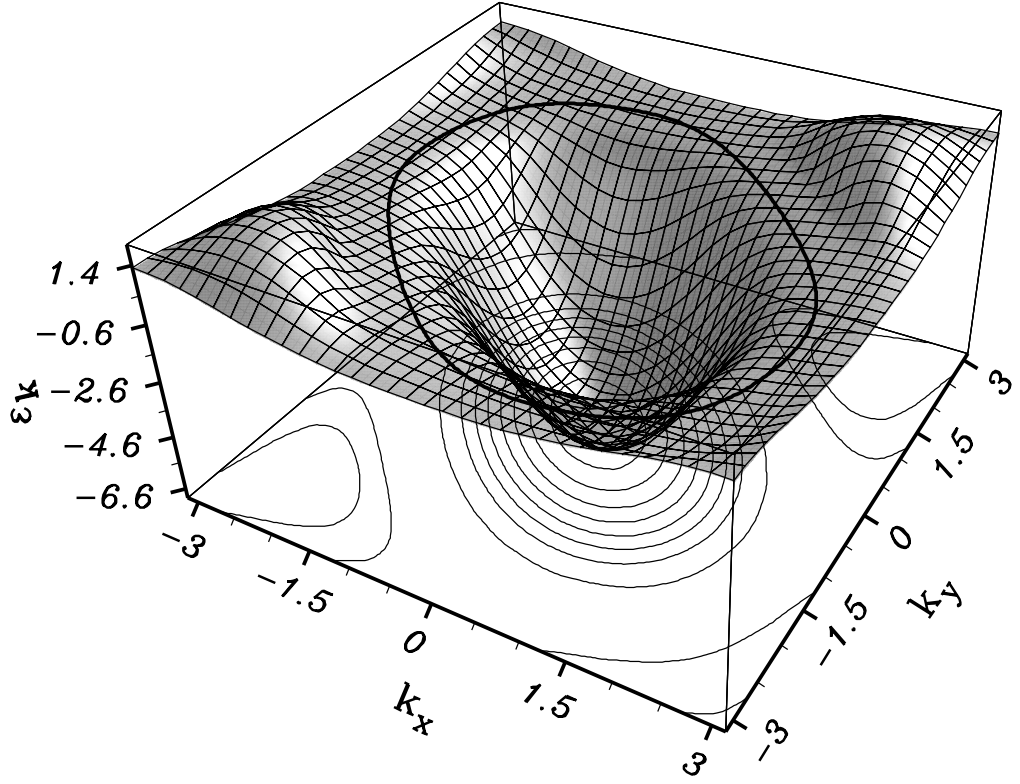


Abbildung 4.3: Impulsabhängigkeit der Quasiteilchendisersion $\epsilon_{\mathbf{k}}$ für $t' = 0.8t$, $T = 0.025t$, $U = 6t$ und halbe Füllung $\delta = 0$, dargestellt in der Topologie des Quadratgitters. Die Fermilinie ($\epsilon_{\mathbf{k}} = 0 \Leftrightarrow \epsilon_F$) ist hervorgehoben.

4.1.2 Diskussion der Quasiteilchendisersion

Ausgangspunkt für alle folgenden Untersuchungen auf dem anisotropen Dreieckgitter ist die für das Dimer-Modell der κ -(ET)₂X relevante diagonale Kopplung $t' = 0.8t$ bei halber Füllung $\delta = 0$.

In Abb. 4.3 ist die Quasiteilchendisersion für $U = 6t$ bei $T = 0.05t$ dargestellt. In der Quadratgitter-Topologie hat die geschlossene Fermifläche eine annähernd elliptische Form, deren lange Halbachse entlang der Diagonalen $(-\pi, \pi) \rightarrow (\pi, -\pi)$ mit t' zunimmt. Die am stärksten gestreckte Ellipse des Falls $t' = t$ hat in der Topologie des isotropen Dreieckgitters eine nahezu rotationssymmetrische bzw. hexagonale Form. Dort ist die hexagonale Symmetrie wiederhergestellt.

Die gesamte Bandbreite beträgt in Abb. 4.3 ca. $9t$, wobei mit ca. $7t$ der über-

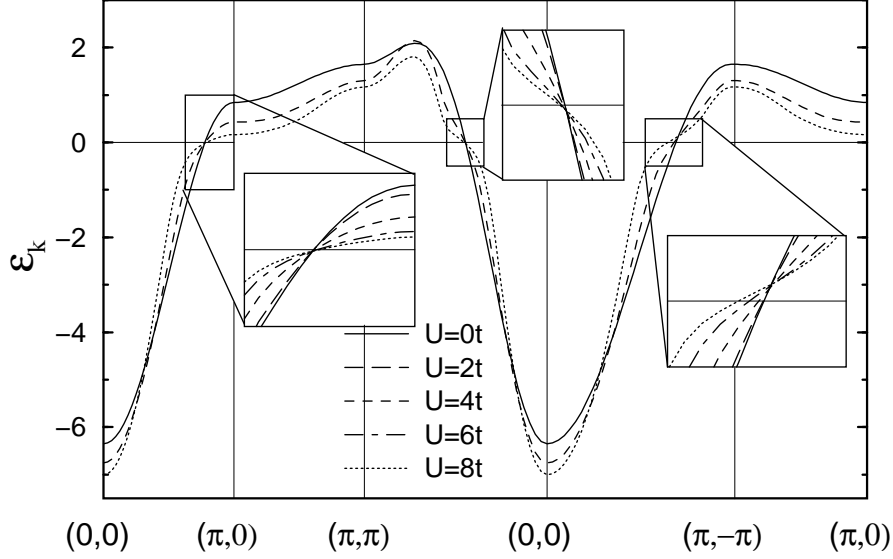


Abbildung 4.4: Quasiteilchendispersionen für die Hubbard-Abstoßungen $U=0-8t$ auf dem geschossenen Weg in der BZ aus Abb. 4.1(c) für $t' = 0.8t$, $T = 0.05t$ und halbe Füllung $\delta = 0.0$. Die Insets zeigen vergrößerte Ausschnitte der Umgebung der Fermilinie. In der großen Graphik sind aus Gründen der Übersichtlichkeit nur die Fälle $U = 0, 4t, 8t$ dargestellt.

wiegende Teil des Bandes mit $\epsilon_{\mathbf{k}} < 0$ auf die Teilchendispersion entfällt. Gegenüber der Tight-Binding Dispersion ist die Bandbreite um ca. $0.5t$ erhöht.

Wie auf dem Quadratgitter liegen die Sattelpunkte der Dispersion für alle t' bei $(\pm\pi, 0)$ und $(0, \pm\pi)$. Aus der flachen Dispersion in der Umgebung der Sattelpunkte resultiert eine lokal hohe Zustandsdichte der Quasiteilchen. Im Fall $t' = t$ fallen die Sattelpunkte mit dem M -Punkt der hexagonalen BZ zusammen. Obwohl im Gegensatz zum Fall $t' = 0$ die Fermiflächen der anisotropen Dreieckgitter bei halber Füllung einen Abstand von $\sim 0.2\pi$ zu den Sattelpunkten haben, sind deren Umgebungen maßgeblich für die Anisotropie z.B. der Selbstenergie in diesen Systemen.

Abb. 4.4 zeigt die Renormierung der Quasiteilchendispersion mit wachsender Hubbard-Wechselwirkung. Ab $U = 4t$ wird eine Abflachung der Dispersion nahe der Fermi-Energie sichtbar. Die Größe dieses Bereichs wächst mit U . Neben der Abflachung kann für $\epsilon_{\mathbf{k}} > 0$ und nahe $\mathbf{k} = (0, 0)$ eine Verschiebung der Dispersion zu negativen Energien beobachtet werden. In Abb. 4.3 ist zu erkennen, daß sich entlang der gesamten Fermifläche in der renormierten Dispersion ein flacher Bereich erstreckt. Im Quasiteilchenbild entspricht dies

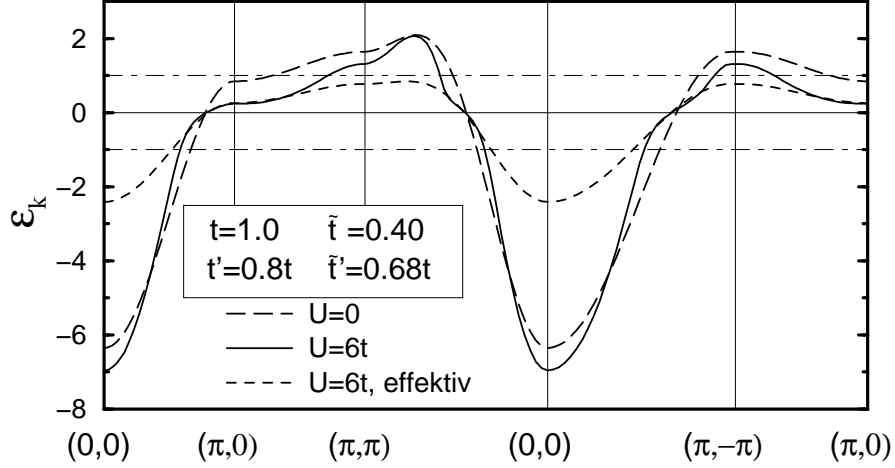


Abbildung 4.5: Vergleich der unrenormierten, der renormierten und der effektiven Dispersion für $t' = 0.8t$, $T = 0.05t$, $U = 6t$, $\delta = 0.0$.

einer Erhöhung der effektiven Masse, wodurch die Beweglichkeit der Teilchen verglichen mit dem wechselwirkungsfreien Fall $U = 0$ reduziert wird.

Die deutliche Abflachung der renormierten Dispersion wird durch den Vergleich mit einer effektiven Dispersion quantitativ untersucht. Die effektive Dispersion entspricht der unrenormierten nach Gl. (2.1) mit effektiven Hüpfamplituden \tilde{t} , \tilde{t}' und einem effektiven chemischen Potential $\tilde{\mu}$. Die effektiven Parameter werden mit einer Näherung mit der Methode der kleinsten Quadrate an die renormierte Dispersion in einer Umgebung $|\epsilon_{\mathbf{k}}| \leq 1.0t$ von ϵ_F bestimmt, die gerade den abgeflachten Teil der Dispersion enthält.¹

Der Vergleich der Dispersionen in Abb. 4.5 zeigt die gute Übereinstimmung der flachen effektiven Dispersion mit der renormierten Dispersion in der Umgebung von ϵ_F . Abb. 4.6 stellt die Entwicklung von \tilde{t} , \tilde{t}' und $\tilde{\mu}$ mit U , T , t' und δ dar.

Entsprechend der qualitativen Beobachtung fällt \tilde{t} mit wachsendem U stark ab, was mit steigender Temperatur teilweise kompensiert wird. Die Renormierung des Hüpfmatrixelements t ist in diesen Topologien auch bei vergleichbarer Hubbard-Abstoßung deutlich stärker als im $t - t' - U$ Modell auf dem Quadratgitter (dort ist z.B. $\tilde{t}_{SQL}(U = 4t) = 0.719t$, [66]). Die Veränderung der Renormierung mit t' ist hingegen vernachlässigbar klein.

Bemerkenswerterweise liegt die effektive diagonale Kopplung \tilde{t}' bei den ani-

¹In einem Energiefenster variabler Breite $|\epsilon_{\mathbf{k}}| \leq \tilde{w}$ mit $0.2t \leq \tilde{w} \leq 1.2t$ sind \tilde{t} , \tilde{t}' , $\tilde{\mu}$ nahezu konstant mit einer Abweichung von $\approx 1\%$.

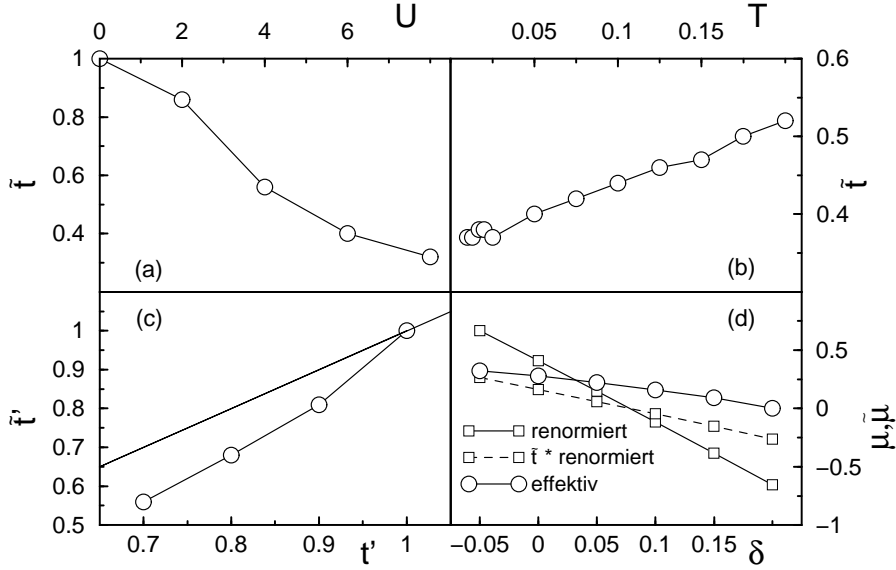


Abbildung 4.6: Parameter \tilde{t} , \tilde{t}' und $\tilde{\mu}$ der effektiven Dispersion bei Variation von (a) U (mit $t' = 0.8t$, $T = 0.05t$, $\delta = 0$), (b) T (mit $t' = 0.8t$, $U = 6t$, $\delta = 0$), (c) t' (mit $T = 0.05t$, $U = 6t$, $\delta = 0$) und (d) δ (mit $t' = 0.8t$, $T = 0.05t$, $U = 6t$).

sotropen Dreiecksgittern unterhalb von t' , während sie im Fall des isotropen Dreiecksgitters unverändert ist. Die Renormierung verringert den Dreieck-Charakter der Gitter um bis zu 20%.

Die, verglichen mit der renormierten Dispersion, langsame Veränderung von $\tilde{\mu}$ als Funktion der Dotierung ist fast vollständig durch die Verringerung der Bandbreite um den Faktor \tilde{t} begründet, wie Abb. 4.6(d) zeigt.

Im gemeinsamen Phasendiagramm der κ -(ET) $_2$ X wird der Austausch der Anionen X als eine Veränderung des Drucks aufgefaßt. Bei den supraleitenden Vertretern $X = \text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$ und $\text{Cu}(\text{NCS})_2$ ist zudem der externe hydrostatische Druck von Interesse.

Die Abbildung des chemischen und hydrostatischen Drucks auf die Parameter U und t' ist bislang nicht eindeutig geklärt [12]. Neben der Identifikation der Hubbard-Abstoßung als inverser Druck wird in [75] die Rolle von t' diskutiert (siehe dazu auch Abschnitt 4.3.1).

Bezüglich dieser Frage wird die Reduktion von \tilde{t}' mit wachsendem U in den Fällen $t' < t$ den Fits eines effektiven Dimer-Modells an Magnetotransport-[89] und optische Daten [134] für zwei hydrostatische Druckverhältnisse gegenübergestellt. Die experimentellen Fermiflächen bei $p = 16.3\text{kbar}$ sind deutlich

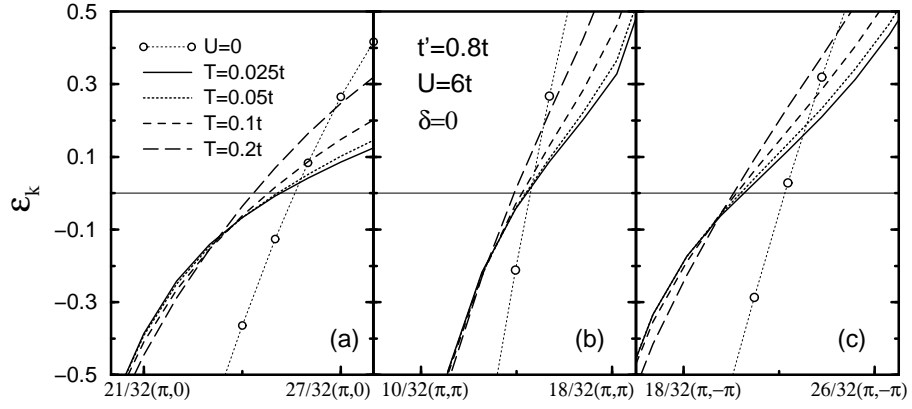


Abbildung 4.7: Temperaturabhängigkeit der Quasiteilchendisersionen für $t' = 0.8t$, $U = 6t$ und $\delta = 0$ an den drei Schnittpunkten mit der Fermifläche in die Richtungen (a) $(0,0) \rightarrow (\pi,0)$, (b) $(0,0) \rightarrow (\pi,\pi)$ und (c) $(0,0) \rightarrow (\pi,-\pi)$. Zum Vergleich ist jeweils die Tight-Binding Dispersion angegeben.

weniger elliptisch als bei $p = 0$ kbar. Dort wächst also die effektive diagonale Kopplung t' in Richtung niedrigen Drucks und, mit der obigen Identifikation, in Richtung großer U .

Dem steht die Beobachtung der Erniedrigung von \tilde{t}' mit wachsendem U im vorliegenden Dimer-Modell gegenüber. Hier wirkt \tilde{t}' der Hubbard-Abstoßung entgegen. Dies spricht für eine Identifikation $\tilde{t}' \propto p$ im gemeinsamen Phasendiagramm.

Abb. 4.7 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Dispersion in der Umgebung der drei Schnittpunkte mit der Fermifläche aus Abb. 4.4. In einem Temperaturbereich von $T = 0.01t - 0.2t$ ist die Dispersion unterhalb der Fermi-Energie nahezu konstant, während ihre Steigung oberhalb der Fermi-Energie mit T zunimmt. Eine Temperaturerhöhung wirkt also der Abflachung an der Fermikante entgegen. Für die Parameter aus Abb. 4.7(b) entspricht ein Anstieg der Temperatur von $0.05t$ auf $0.2t$ bei $U = 6t$ etwa der Reduktion von U von $6t$ auf $4t$ bei $T = 0.05t$ bzgl. der Steigung der Dispersion an der Fermikante.

Die Quasiteilchendisersion bei Variation der Dotierung und der diagonalen Kopplung wird exemplarisch für jeweils einen Schnittpunkt mit der Fermifläche diskutiert. Die Erhöhung der Teilchenzahl entspricht einer Erhöhung des Volumens der Fermifläche. Dies geht mit einer Verschiebung der Dispersion zu negativen Energien einher, so daß der teilchenartige Bereich der Dispersion mit $\epsilon_{\mathbf{k}} < \epsilon_F$ ansteigt. Neben die aufgrund der Verschiebung veränderte

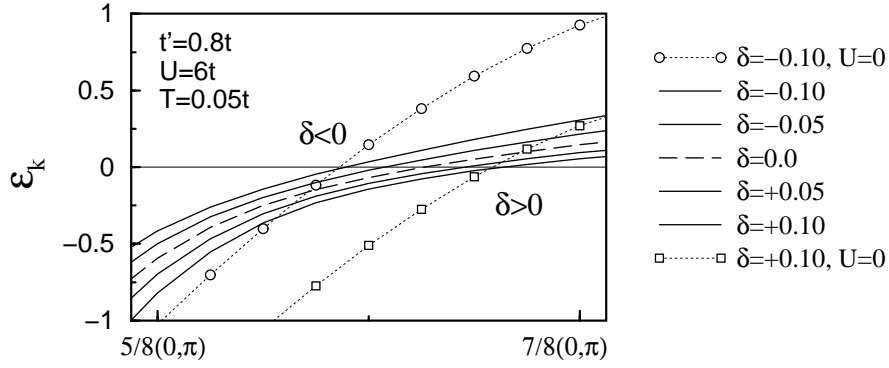


Abbildung 4.8: Dotierungsabhängigkeit der Quasiteilchendisersionen für $t' = 0.8t$, $U = 6t$ und $T = 0.05t$ am Schnittpunkt mit der Fermifläche in Richtung $(0,0) \rightarrow (0,\pi)$. Zum Vergleich sind für die extremalen Dotierungen die Tight-Binding Dispersionskurven angegeben.

Steigung der Tight-Binding Dispersion an der Fermikante tritt die oben beschriebene Abflachung nahe ϵ_F durch die Renormierung. In Abb. 4.8 ist bei Erhöhung der Dotierung eine Verschiebung des Schnittpunkts mit der Fermifläche in Richtung $(0,0) \rightarrow (0,\pi)$ sichtbar und ebenso die deutliche Abflachung der renormierten verglichen mit den unrenormierten Dispersionskurven.

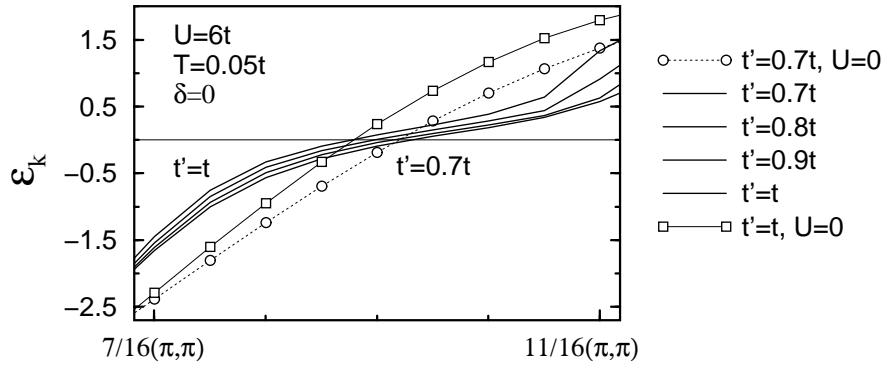


Abbildung 4.9: Abhängigkeit der Quasiteilchendisersion von dem diagonalen Hüpfmatrixelement $t' = 0.7t - 1.0t$ bei $U = 6t$, $T = 0.05t$ und halber Füllung am Schnittpunkt mit der Fermifläche in Richtung $(0,0) \rightarrow (\pi,\pi)$. Zum Vergleich sind für $t' = 0.7t$ (Kreise) und $t' = t$ (Quadrate) die Tight-Binding Dispersionskurven eingezeichnet.

Abb. 4.9 zeigt die Veränderung der Dispersion bei Erhöhung des diagonalen Hüpfmatrixelements t' von $0.7t$ auf t am Schnittpunkt mit der Fermifläche in Richtung $(0,0) \rightarrow (\pi,\pi)$, die sowohl in der Quadrat- als auch der Dreieckgitter-Topologie dem Weg zum kommensurablen Wellenvektor entspricht. In der dargestellten Richtung verschiebt sich die Fermifläche der Tight-Binding Dispersion zu kleineren Impulsen, in Richtung $(0,0) \rightarrow (\pi,-\pi)$ zu größeren. Bei fester Dotierung wird die aus dieser Variation resultierende geänderte Bandfüllung mit dem chemischen Potential kompensiert, also die gesamte Dispersion gegenüber der Fermi-Energie verschoben. Die Steigung der Dispersion an der Fermikante hängt zunächst von der Variation von t' , dann von der Bandverschiebung und schließlich von der Abflachung durch die Renormierung ab. Wie schon bei der Dotierungsabhängigkeit beobachtet, werden die ersten beiden Faktoren bei $U = 6t$ von der renormierungsbedingten Abflachung soweit dominiert, daß sich die Steigung zwischen $t' = 0.7t$ und $t' = t$ nur unerheblich ändert.

4.2 Paramagnonen

Die Nähe der antiferromagnetischen zu der supraleitenden Phase im gemeinsamen Phasendiagramm der organischen Verbindungen $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ ist eine wesentliche Analogie dieser Systeme zu den Kuprat-Supraleitern. Die auf dem Quadratgitter gefundene Dominanz der Spinfluktuations-Streumatrix $T_{sf}(\mathbf{q}, \omega)$ ist auch bei den anisotropen Dreieckgittern festzustellen. Allerdings bedingt die mit t' eingeführte geometrische Frustration der hier untersuchten Systeme eine deutlich kompliziertere Struktur der Anregungen der T_{sf} -Matrix.

Auf dem Quadratgitter erscheint im $t - t' - U$ Modell bei kleinen Dotierungen und $U \sim 4t$ bei dem Impuls des antiferromagnetischen Wellenvektors $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ ein Peak im statischen Spin-Strukturfaktor $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ mit einer wohldefinierten Halbwertsbreite im Impulsraum. Dieser Peak ist auf dem Quadratgitter Vorbote des Phasenübergangs zum antiferromagnetischen Zustand. Seine Divergenz bei $\omega = 0$ und $\mathbf{q} = \mathbf{Q}$ signalisiert das Einsetzen von langreichweitiger antiferromagnetischer Ordnung. Da die FLEX-Näherung das Mermin-Wagner-Theorem [131] nicht verletzt, ergibt sich bei endlichen Temperaturen kein Symmetriebruch zum antiferromagnetischen Zustand. Die Anregung in der T_{sf} -Matrix ist also kein Magnon, sondern hat eine endliche Lebensdauer und Reichweite im Impuls- und Ortsraum und heißt somit Paramagnon.

Die (an)isotropen Dreieckgitter zeigen in Abhängigkeit von t' und der Dotierungen vielgestaltige inkommensurable und kommensurable Paramagnon-Strukturen, die in diesem Abschnitt vorgestellt werden.

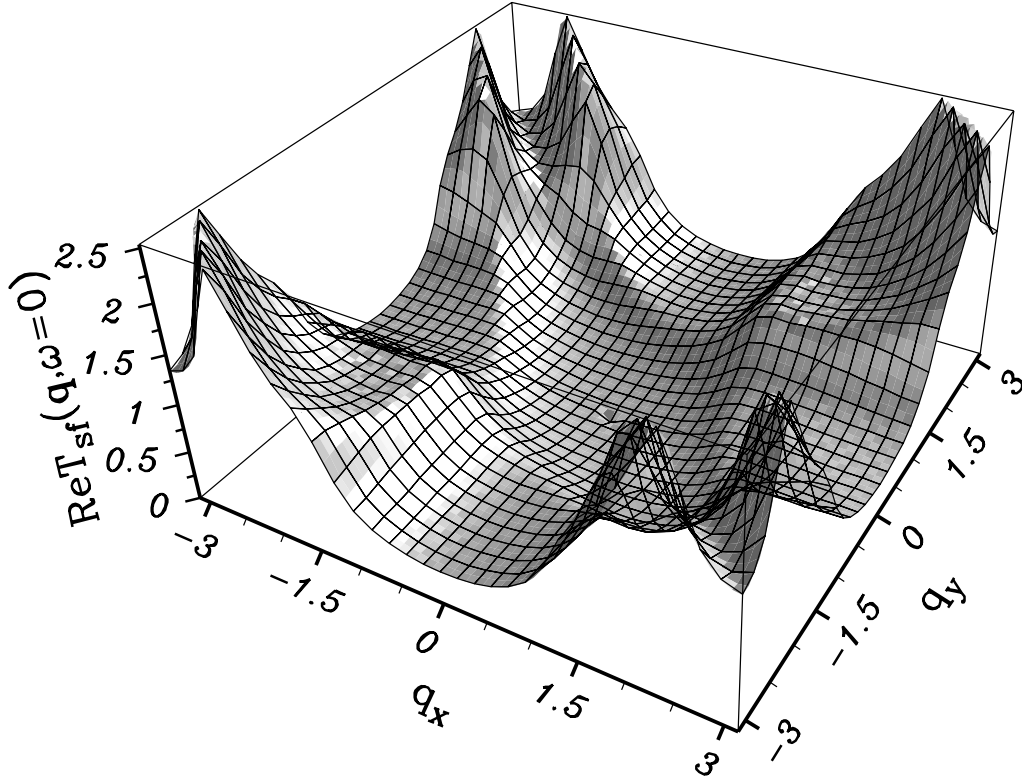


Abbildung 4.10: Der statische Spin-Strukturfaktor $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ auf der BZ für $t' = 0.8t$, $T = 0.05t$, $U = 6t$ und $\delta = 0$.

Die Spinfluktations-Streumatrix T_{sf} dominiert für alle Parametersätze das Verhalten der effektiven Wechselwirkung $V_{\mathbf{q}}(\omega)$. Da der mit $T_{\rho\rho}$ berücksichtigte Dichte-Dichte Kanal lediglich mit 2–4% zu $V_{\mathbf{q}}(\omega)$ beiträgt, kann er in der folgenden Diskussion vernachlässigt werden.

Real- und Imaginärteil von T_{sf} sind über Kramers-Kronig-Relationen miteinander verbunden. Seinen maximalen Wert nimmt der Realteil bei $\omega = 0$ an. $\text{Re}T_{sf}$ bestimmt die Stärke der Spinfluktuationen und ihre Ausdehnung im Impulsraum. Die Frequenz-Halbwertsbreite von $\text{Re}T_{sf}$ legt das Maximum in $\text{Im}T_{sf}$ und damit die Spinfluktationsfrequenz ω_{sf} fest. Diese ist die charakteristische Energieskala der Spinfluktuationen. Beide Größen sind wesentlich für das Verständnis der auf den anisotropen Dreiecksgittern vorherrschenden Spinkorrelationen.

Abb. 4.10 zeigt ein Beispiel der $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ des anisotropen Dreieckgitters. Neben den in dieser Topologie länglichen Paramagnonen-Peaks nahe

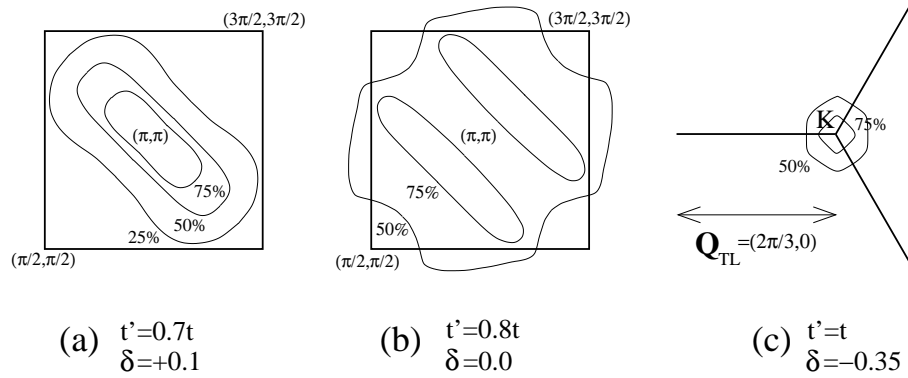


Abbildung 4.11: Contourlinien der Paramagnon-Peaks bei drei diagonalen Kopplungen t' , verschiedenen Dotierungen und $T = 0.025t$, $U = 6t$. Die Contouren zeigen Höhenlinien bei 25%, 50% (die Halbwertsbreite) und 75% des Maximums von $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$. Die Bilder (a) und (b) sind in der Topologie des Quadratgitters dargestellt und (c) in der des Dreieckgitters.

(π, π) und der Doppelpeakstruktur bei $(\pi, -\pi)$ erfordert die starke Anisotropie eine Darstellung auf der gesamten BZ.

Abb. 4.11 gibt einen Überblick über den Einfluß der diagonalen Kopplung t' und der Dotierung δ auf die Impulsraumstruktur der Paramagnonen. Die Definition einer Halbwertsbreite der Anregungen ist für die Beispiele in Abb. 4.11(a) und (b) offensichtlich nicht sinnvoll. Der mit dem Quadratgitter kommensurable aber diagonal stark gestreckte Paramagnon-Peak aus Abb. 4.11(a) teilt sich bei Erhöhung von t' und Reduktion der Dotierung. Abb. 4.11(b) zeigt die Höhenlinien der in der vorangegangenen Abb. 4.10 dargestellten T_{sf} -Matrix. Bei halber Höhe der hier inkommensurablen Doppelpeakstruktur um (π, π) erscheint ein ausgedehntes Plateau, welches etwa $1/4$ der BZ einnimmt. Weitere Erhöhung von t' bis $t' = t$ und eine starke Verringerung der Bandfüllung auf $n \sim 2/3$ verschieben die Peakstruktur bis zu dem in Abb. 4.11(c) gezeigten scharfen Paramagnon-Peak am kommensurablen Impuls des Dreieckgitters.

Im folgenden wird die Abhängigkeit der Impulsraumstruktur von $\text{Re}T_{sf}$ weiter untersucht.

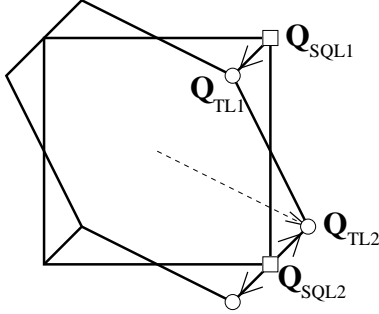


Abbildung 4.12: Übergang vom Quadrat- zum isotropen Dreiecksgitter

Da mit t' das $t - U$ Modell des Quadratgitters kontinuierlich in das des isotropen Dreieckgitters überführt werden kann, kommt der Untersuchung der topologiebedingten Kommensurierung besondere Aufmerksamkeit zu. Im Grenzfall des Quadratgitters liegen kommensurable Wellenvektoren antiferromagnetischer Kopplung z.B. bei $\mathbf{Q}_{SQL1} = (\pi, \pi)$ und $\mathbf{Q}_{SQL2} = (\pi, -\pi)$. Im Grenzfall des Dreieckgitters befinden sich die entsprechenden Wellenvektoren in der vorliegenden Topologie bei $\mathbf{Q}_{TL1} = 2/3(\pi, \pi)$ und $\mathbf{Q}_{TL2} = (4/3\pi, -\pi/2)$. Zwischen diesen Grenzfällen ist die Festlegung kommensurabler Wellenvektoren nicht sinnvoll. Ein kontinuierlicher Übergang zwischen ihnen ergibt die in Abb. 4.12 skizzierten Verläufe. In der oberen Hälfte des dargestellten Bereichs verschiebt sich \mathbf{Q} , in der unteren teilt sich der Wellenvektor in zwei verschobene auf. Die direkte Verbindung $(0, 0) \rightarrow \mathbf{Q}_{TL2}$ schneidet den Rand der Darstellung bei $(\pi, -\pi/2)$.

Die Stärke der Spinfluktuationen wächst gemäß Gl. (3.5) quadratisch mit der Hubbard-Abstoßung U . Die Zunahme von $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ am Impuls der Paramagnon-Peaks zeigt eine Annäherung an die antiferromagnetische Phase mit abnehmender Temperatur.

Bei der für die organischen Verbindungen relevanten Kopplung $t' = 0.8t$ beträgt die Überhöhung von $\text{Re}T_{sf}$ an den Paramagnon-Peaks gegenüber dem minimalen Wert bei $\mathbf{q} = 0$ lediglich einen Faktor von $\sim 7-9$ und ist damit deutlich geringer als im Fall des Quadratgitters (dort beträgt die Überhöhung ~ 400 [66]).

Die Frage nach der Entfernung zur Instabilität gegenüber einer Spindichtewelle (SDW) wird in Abb. 4.13 untersucht. Das verallgemeinerte Stoner-Kriterium für eine Spindichtewelle mit dem Wellenvektor \mathbf{q} lautet

$U_{cr}\chi_{\mathbf{q}}^0(\omega) = 1$. Ist es erfüllt, divergiert die T_{sf} -Matrix aus Gl. (3.2) und das System wird instabil gegenüber der SDW. Die maximalen Werte von $\chi_{\mathbf{q}}^0(\omega)$ werden bei den Impulsen der Paramagnon-Peaks bei $\omega = 0$ gefunden.

Für $T > 0$ schließt das Mermin-Wagner-Theorem in zwei Dimensionen langreichweitige Ordnung aus. Das $t - t' - U$ Modell auf dem Quadratgitter zeigt allerdings nahe halber Füllung eine asymptotische Annäherung von $U\chi_{\mathbf{q}}$ an 1, also eine Tendenz zu antiferromagnetischer Ordnung [66].

In Abb. 4.13 ist von $T = 0.2t$ bis $T = 0.01t$ ein in guter Näherung lineares

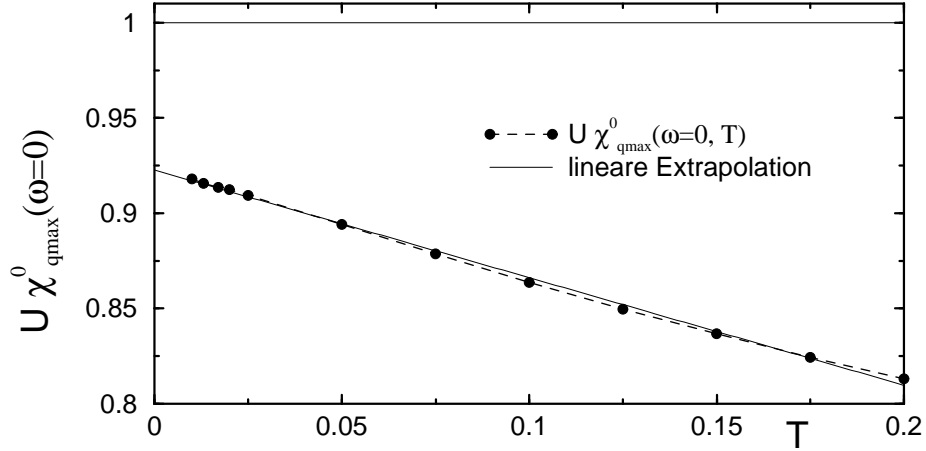


Abbildung 4.13: Temperaturabhängigkeit von $U\chi_{\mathbf{q}_{\max}}^0(\omega=0)$ für $t' = 0.8t$, $U = 6t$ und $\delta = 0$. Bei $U\chi_{\mathbf{q}_{\max}}^0(\omega=0) = 1$ wird das Modell instabil gegenüber einer Spindichtewelle. Die Punkte $U\chi_{\mathbf{q}_{\max}}^0(\omega=0)$ am Ort \mathbf{q}_{\max} der Paramagnon-Peaks sind linear bis zu $T = 0$ extrapoliert.

Anwachsen von $U\chi_{\mathbf{q}}^0(\omega=0)$ zu beobachten, welches extrapoliert zu $T = 0$ für den vorliegenden Parametersatz mit ≈ 0.92 deutlich unterhalb des kritischen Wertes liegt. Entsprechende lineare Anstiege von $U\chi_{\mathbf{q}}^0(\omega=0)$ sind bei allen Parametersätzen des anisotropen Dreieckgitters zu finden. Die Systeme sind also mit $U < W$ auch für $T \rightarrow 0$ merklich vom kritischen U_{cr} der Instabilität zu einer Spindichtewelle entfernt. Im speziellen gilt diese Aussage auch für die beiden kommensurablen Systeme bei $t' = 0.7t$ und $\delta = +0.1$ sowie $t' = t$ und $\delta = -0.35$. Obwohl hier bei $T = 0.025t$ mit 0.97 bzw. 0.95 die größten Werte von $U\chi_{\mathbf{q}}^0(\omega=0)$ gefunden werden, ist keine asymptotische Annäherung zu bemerken.

In Abb. 4.14 wird die Energieskala der Spinfluktuationen auf dem (an)isotropen Dreieckgitter untersucht. Sie wird mit der Frequenz des Maximums in $\text{Im}T_{sf}$, der Spinfluktationsfrequenz ω_{sf} , dargestellt.

Mit den drei Parameter-Kombinationen (t', δ) werden in Abb. 4.14(b) die vorangegangenen Beispiele weiter betrachtet. Lediglich im Fall der mit \mathbf{Q}_{SQL1} kommensurablen Spinfluktuationen und bei $U = 8t$ unterschreitet ω_{sf} die Temperatur. In allen anderen Parametersätzen des (an)isotropen Dreieckgitters gilt hingegen $\omega_{sf} > T$. Bei einer linearen Extrapolation zu hohen U würde dort $\omega_{sf} \approx T$ erst für $U \gg W$ erreicht.

Bei $\omega_{sf} < T$ wird die Spinfluktationsfrequenz die kleinste Energieskala des

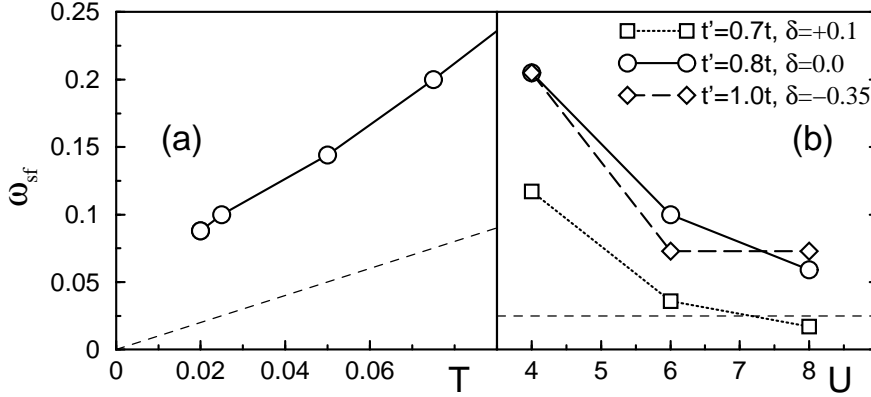


Abbildung 4.14: Die minimale Spinfluktationsfrequenz ω_{sf} wird an den Maxima der Paramagnon-Peaks gefunden. (a) Temperaturabhängigkeit von ω_{sf} bei $t' = 0.8t$, $U = 6t$ und $\delta = 0.0$. (b) Abhängigkeit von der Hubbard-Abstoßung U bei $T = 0.025t$ und drei Kombinationen von t' und δ . Die gestrichelten Linien bezeichnen jeweils die Temperatur.

Modells. Ein erheblicher Teil der Spinfluktationen ist thermisch angeregt und bestimmt so maßgeblich die Selbstenergie (siehe Abschnitt 4.3.2). Im $t - t' - U$ Modell auf dem Quadratgitter liegt aufgrund der guten Nesting-Situation nahe halber Füllung schon bei mittleren Temperaturen der Fall $\omega_{sf} < T$ vor.

In dem in Abschnitt 4.7.2 betrachteten $t - t'' - U$ Modell auf dem isotropen Dreieckgitter tritt $\omega_{sf} < T$ bei $\delta = -0.35$ und $U = 8t$ erneut auf. Zusammen mit der Beobachtung am Quadratgitter legen die beiden Parameterkombinationen die Interpretation nahe, daß der Fall thermisch stark angeregter Spinfluktationen $\omega_{sf} < T$ bei kommensurablen Paramagnon-Peaks auftritt. Hierbei ist offenbar die Topologie des zugrundeliegenden Gitters unerheblich.²

Anhand von drei Parameter-Kombinationen (t', δ) ist der Wechsel der Komensurierung der Spinfluktationen von den Wellenvektor \mathbf{Q}_{SQL} des Quadratgitters zu \mathbf{Q}_{TL} des Dreieckgitters und der dabei variierende Abstand der Systeme zu den entsprechenden SDW Phasen gezeigt worden. Diese Ergeb-

²Es ist kritisch anzumerken, daß beide Beispiele für $\omega_{sf} < T$ bei relativ starker Hubbard-Abstoßung $U = 8t$ gefunden werden, die knapp kleiner ist als die Bandbreite W . Die Ergebnisse der FLEX-Methode als Approximation schwacher Wechselwirkung sind hier nur bedingt angemessen.

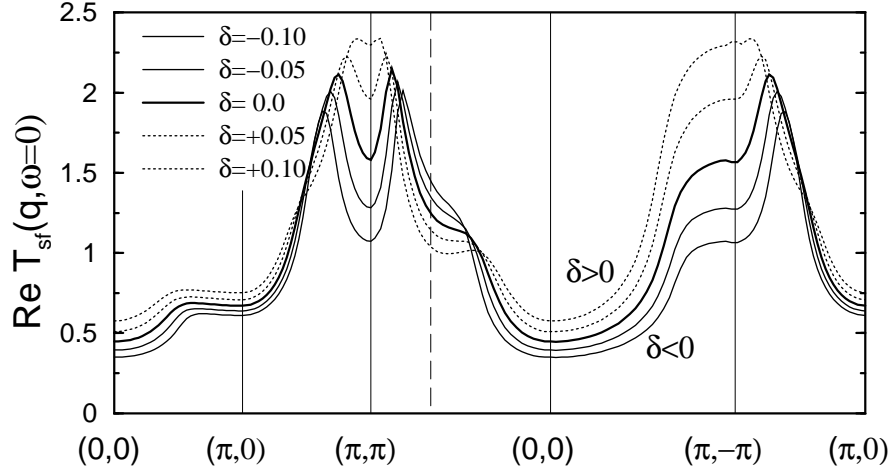


Abbildung 4.15: $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ in Abhängigkeit von der Dotierung auf einem geschlossenen Weg in der BZ bei $t' = 0.8t$, $U = 6t$ und $T = 0.025t$. Die vertikale, gestrichelte Linie bezeichnet den Ort des kommensurablen Wellenvektors des isotropen Dreieckgitters.

nisse motivieren die folgende systematische Untersuchung der Spinfluktuationen in Abhängigkeit von der Dotierung und der diagonalen Kopplung.

Diese wird unterteilt in die Betrachtung von T_{sf} in der Umgebung der für die κ -(ET)₂X als relevant angesehene Parameterkombination $t' = 0.8t$ und halbe Füllung, gefolgt von der Betrachtung des stark erweiterten Dotierungsbereichs.

Abb. 4.15 zeigt die Dotierungsabhängigkeit der Spinfluktuationen in einem Bereich von $\delta = \pm 0.1$ um halbe Füllung. Hier sind sowohl die Lage der Paramagnon-Peaks relativ zum kommensurablen antiferromagnetischen Wellenvektor des Quadratgitters $\mathbf{Q}_{SQL1} = (\pi, \pi)$ als auch exemplarisch zu einem der kommensurablen Impulse des isotropen Dreieckgitters $\mathbf{Q}_{TL1} = \frac{2}{3}(\pi, \pi)$ von Interesse. Bei halber Füllung befindet sich das Maximum von $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ etwa zwischen diesen beiden Wellenvektoren. Mit abnehmender Füllung bewegt es sich in Richtung \mathbf{Q}_{TL1} , bei Erhöhung von δ in Richtung \mathbf{Q}_{SQL2} . Auch die Reduktion des Gewichts und die Ausbildung der Schulter bei $\mathbf{Q}_{SQL2} = (\pi, -\pi)$ ist auf die Bewegung des Peaks weg von diesem Punkt zurückzuführen. Die Variation der Dotierung führt nahe halber Füllung also hauptsächlich zu einer Verschiebung der Paramagnon-Peaks und verändert deren Amplitude nur geringfügig. Ursache der Peakverschiebung ist die in Abschnitt 4.3.1 erläuterte Nesting-Situation.

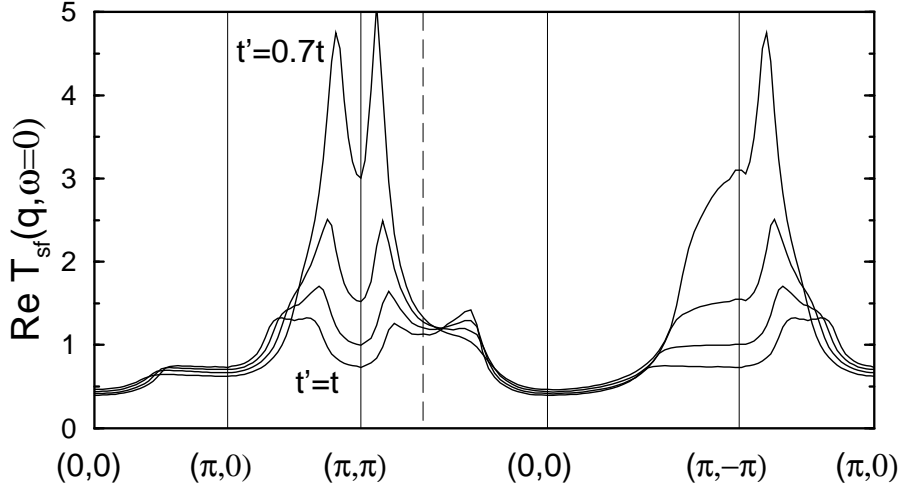


Abbildung 4.16: $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ in Abhängigkeit von der diagonalen Koppelung $t' = 0.7t, 0.8t, 0.9t, 1.0t$ auf einem geschlossenen Weg in der BZ bei $U = 6t$, $T = 0.025t$, $\delta = 0$. Die vertikale, gestrichelte Linie bezeichnet den Ort des kommensurablen Wellenvektors des isotropen Dreieckgitters.

Die Reaktion der Spinfluktuationen auf Variation von t' ist in Abb. 4.16 dargestellt. Der bei $t' = 0.7t$ ausgeprägte Peak in $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ nahe des kommensurablen Impulses \mathbf{Q}_{SQL1} fällt mit der Erhöhung von t' stark ab. Gleichzeitig entsteht ein weiterer Peak bei $\sim 0.4\mathbf{Q}_{SQL1}$. Im Fall des isotropen Dreieckgitters liegen schwache und im Impulsraum ausgedehnte Gebiete jenseits der kommensurablen Wellenvektoren $\mathbf{Q}_{SQL1,2}$ und $\mathbf{Q}_{TL1,2}$ vor. Die Erhöhung von $t' = 0.7t$ bis t hat ein dramatisches Abfallen der Paramagnon-Peaks bei gleichzeitigem Anwachsen neuer, ebenso schwacher Strukturen zur Folge. Hierbei verschiebt sich die Position der Peaks nur geringfügig. Eine Erklärung der gedämpften Spinfluktuationen ist die mit t' erhöhte geometrische Frustration in diesen Systemen, eine weitere folgt aus der Nesting-Situation.

Die bisherigen Ergebnisse bzgl. der Größe der Spinfluktuationen und deren Impulsraumstruktur werden in Abb. 4.17 mit der Betrachtung eines nochmals vergrößerten Dotierungsbereichs erweitert. Damit wird die Modellierung des Natrium-Kobalt-Oxyhydrats als Grenzfall des isotropen Dreieckgitters ($t' = t$) bei $\delta = -0.35$ berücksichtigt.

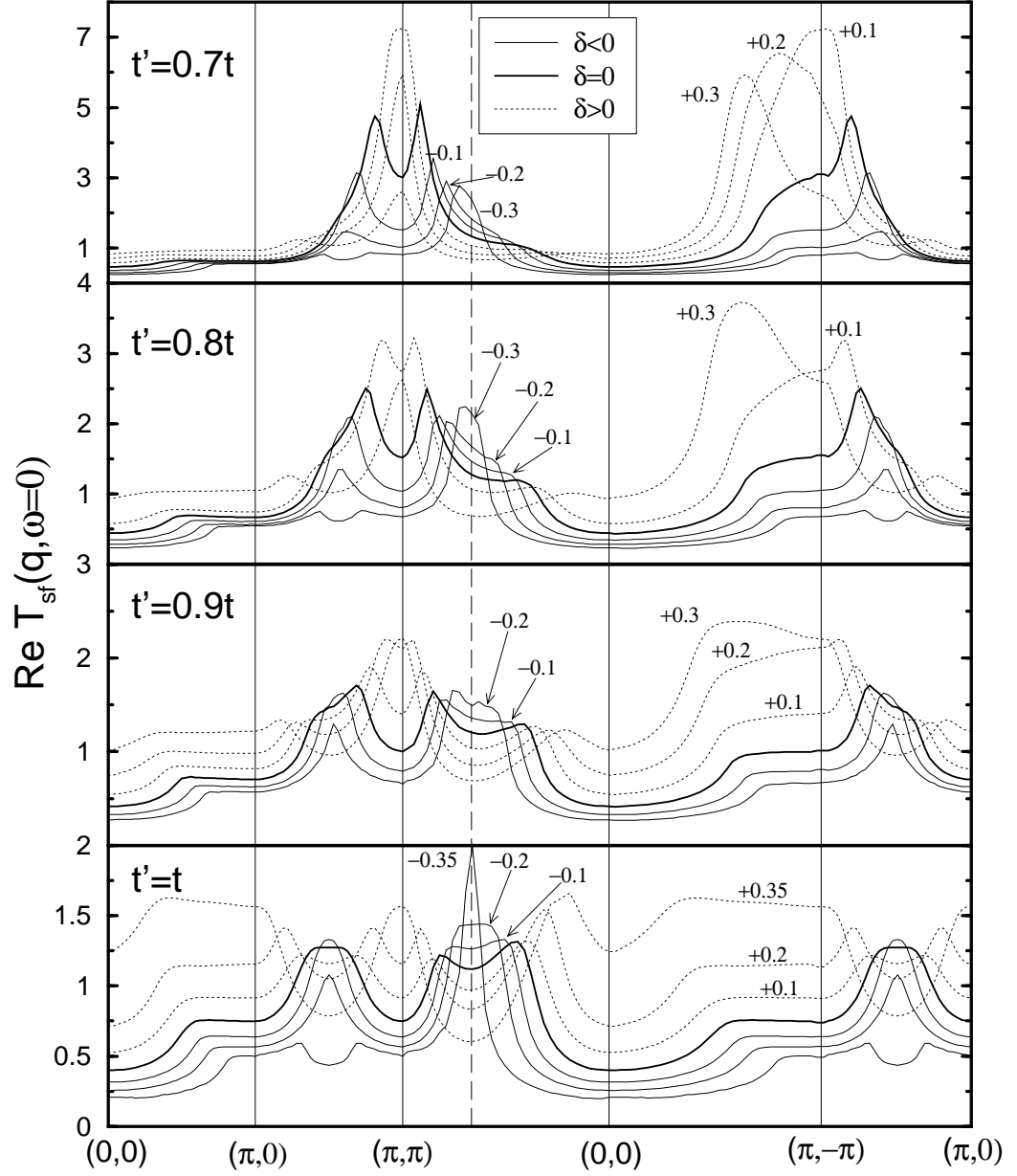


Abbildung 4.17: Übersicht über die statischen Spin-Strukturfaktoren $\text{Re } T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ auf einem geschlossenen Weg in der BZ bei $U = 6t$, $T = 0.025t$ in einem weiten Dotierungsbereich und bei den diagonalen Kopplungen $t' = 0.7t$ bis $t' = t$. Die vertikale, gestrichelte Linie bezeichnet den Ort des kommensurablen Wellenvektors $\mathbf{Q}_{TL1} = 2/3(\pi, \pi)$.

In den vier Bildern kann bei fester diagonaler Kopplung t' jeweils die Wanderung des Paramagon-Peaks mit der Dotierung und die deutliche Verstärkung an den kommensurablen Impulsen beobachtet werden. Im vertikalen Vergleich der Bilder verdeutlicht die Höhe von $\text{Re}T_{sf}$ speziell an den Impulsen $\mathbf{Q}_{SQL1} = (\pi, \pi)$ und $\mathbf{Q}_{TL1} = 2/3(\pi, \pi)$ die Veränderung der Gittertopologie bis zum isotropen Dreiecksgitter für $t' = t$.

Die Erweiterung zeigt, daß nicht, wie die obigen Ergebnisse andeuten, jeweils ein Parameter hauptsächlich eine Eigenschaft der Spinfluktuationen beeinflusst. Vielmehr ergibt sich die Form der Paramagnonen aus dem Zusammenspiel von δ und t' .

Zunächst legt t' die Struktur der unrenormierten Dispersion fest. Mit der Dotierung wird das Fermi-Niveau in dieser Dispersion so verschoben, daß die Fermilinie starke Streuung an Spinfluktuationen mit \mathbf{Q}_{SQL} , \mathbf{Q}_{TL} und inkommensurablen Impulsen begünstigt. Die Stärke der Spinfluktuationen wird weiterhin beeinflusst von der Zustandsdichte an der Fermifläche. Diese hängt wiederum stark von der Topologie der unrenormierten Dispersion und damit von t' ab.

Bei $t' = 0.7t$ ist das System bereits so weit vom Fall des Quadratgitters entfernt, daß die in [66] beobachtete extreme Überhöhung der Paramagnon-Peaks ausbleibt. Die größte Streuung wird hier bei $\delta = +0.1$ allerdings weiterhin am kommensurablen Impuls des Quadratgitters gefunden. Der Paramagnon-Peak nahe \mathbf{Q}_{TL1} bei der Dotierung $\delta = -0.3$ ist um einen Faktor ~ 3 kleiner als der bei \mathbf{Q}_{SQL} . Der Übergang zu größeren t' resultiert neben einer Peakverschiebung weg von $\mathbf{Q}_{SQL1,2}$ in einer Verringerung der Amplitude von $\text{Re}T_{sf}$ bei positiver Dotierung. Gleichzeitig wächst der Paramagnon-Peak bei \mathbf{Q}_{TL1} . Am Rand des dargestellten Bereichs bei $(\pi, -\pi/2)$ kann für $\delta < 0$ das Anwachsen einer Flanke des Paramagnon-Peaks bei \mathbf{Q}_{TL2} mit zunehmendem t' beobachtet werden.

Während der größte Absolutwert der Spinfluktuationen bei $t' = 0.7t$ und $\delta = +0.1$ auftritt, zeigt das System mit $t' = t$ bei $\delta = -0.35$ den schärfsten Paramagnon-Peak und die größte Überhöhung gegenüber dem Wert in der Bandmitte. Die Parameterkombination $t' = 0.8t$ und $\delta = 0$ des Dimer-Modells befindet sich also gerade im Übergangsbereich zwischen den vom Quadratgitter bekannten antiferromagnetischen Spinkorrelationen und denen des Dreieckgitters.

In Abb. 4.18 wird exemplarisch die Inkommensurabilität des Paramagnon-Peaks in Richtung $(0, 0) \rightarrow (\pi, \pi)$ in Abhängigkeit von t' und der Dotierung quantifiziert. Aufgetragen ist die Verschiebung x zu \mathbf{Q}_{SQL1} . Die Peakposition ist also $(1 - x)(\pi, \pi)$. Die Verschiebung $x = 1/3$ entspricht \mathbf{Q}_{TL1} .

Nahezu im gesamten Dotierungsbereich ergibt sich ein linearer Abfall der

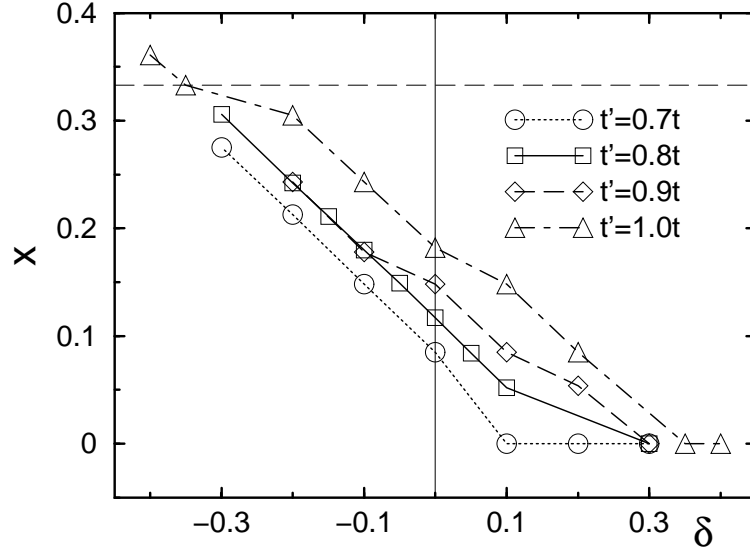


Abbildung 4.18: Dotierungsabhängigkeit der Position des Paramagnon-Peaks in Richtung $(0,0) \rightarrow (\pi, \pi)$. Die Peakposition liegt bei $(1-x)(\pi, \pi)$ und ist dargestellt für $T = 0.05t$ und $U = 6t$. Die Verschiebung $x = 1/3$ entspricht \mathbf{Q}_{TL1} und wird mit der gestrichelten Linie hervorgehoben.

Peakverschiebung von \mathbf{Q}_{SQL1} mit wachsender Dotierung.³

Bemerkenswerterweise bleibt die Peakposition nach Erreichen von \mathbf{Q}_{SQL1} sowohl bei $t' = 0.7t$ als auch bei $t' = t$ über einen gewissen Dotierungsbereich hinweg konstant. Offenbar bevorzugen alle Systeme Spinanregungen mit der Periodizität des zugrundeliegenden Gitters. Diese verbindet nicht nur gegenüberliegende Teile *einer* Fermifläche miteinander sondern auch die von benachbarten Fermiflächen.

Auch in der Topologie des anisotropen Dreieckgitters ist der Wellenvektor \mathbf{Q}_{SQL1} gegenüber anderen und im speziellen gegenüber dem kommensurablen Impuls des Dreieckgitters \mathbf{Q}_{TL1} ausgezeichnet. Ein Verweilen des Paramagnon-Peaks bei $t' = t$ am Impuls \mathbf{Q}_{TL1} kann nicht aufgelöst werden. Die dotierungsabhängige Peakverschiebung zwischen \mathbf{Q}_{SQL} und \mathbf{Q}_{TL} beschränkt sich auf die Umgebung des Punktes (π, π) . In Richtung $(\pi, -\pi)$ zeigt Abb. 4.17 hiervon deutlich abweichendes Verhalten.

³Eine lineare Regression bei $t' = 0.8t$ im Bereich von $\delta = -0.3 - 0.1$ ergibt eine Steigung von $\frac{dx}{d\delta} = -0.635$.

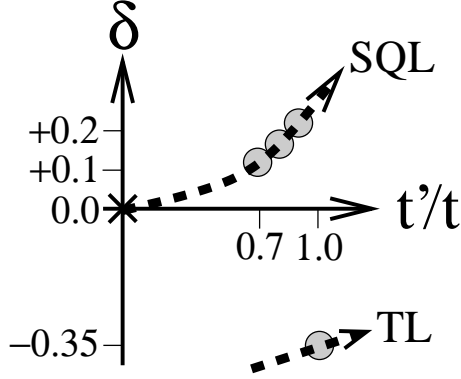


Abbildung 4.19: Schematische Zusammenfassung der dotierungsabhängigen Kommensurierung der (an)isotropen Dreieckgitter.

In Abb. 4.19 ist die Impulsabhängigkeit der kommensurablen Spinanregungen schematisch zusammengefaßt. Im $t - U$ Modell des Quadratgitters liegt eine Instabilität gegenüber antiferromagnetischer Ordnung (mit \mathbf{Q}_{SQL}) bei halber Füllung vor.

Mit wachsendem t' nimmt die kurze Halbachse der nahezu elliptischen Fermifläche ab, wodurch sich die quasi-eindimensionalen Teile der Fermifläche von dem Abstand \mathbf{Q}_{SQL} zueinander entfernen. Eine mit t' wachsende Dotierung kann dies kompensieren und abgeschwächte Spinanregungen bei \mathbf{Q}_{SQL} bis $t' = t$ erhalten.

Der kommensurable Wellenvektor des Dreieckgitters \mathbf{Q}_{TL} ist um $1/3$ kürzer als der des Quadratgitters. Während sich die Anregung bei \mathbf{Q}_{SQL} mit wachsendem t' zu höherer Füllung verschiebt, erfordert jene bei \mathbf{Q}_{TL} eine erhebliche negative Dotierung. Dabei ist die topologische Frustration auf dem Dreieckgitter verantwortlich für die verglichen mit dem Quadratgitter geringe Verstärkung der kommensurablen Spinfluktuationen.

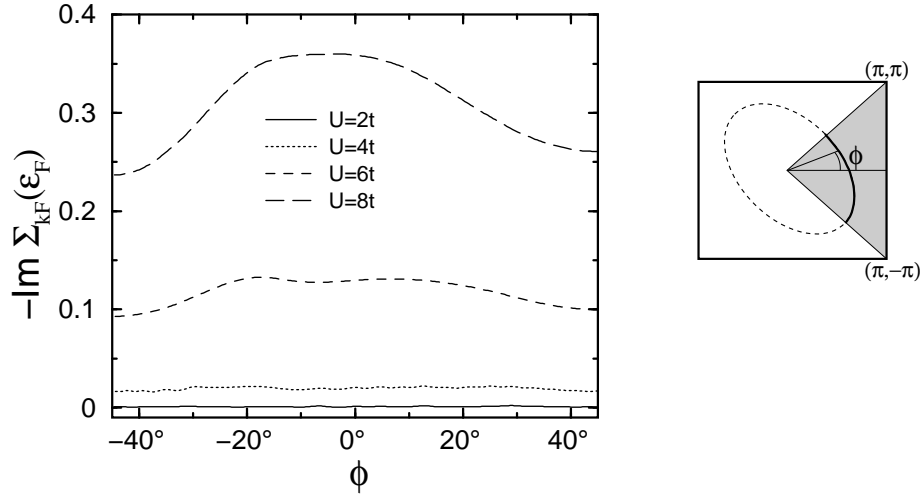


Abbildung 4.20: Der Imaginärteil der Selbstenergie für $U = 2t, 4t, 6t, 8t$ auf der Fermilinie und bei der Fermi-Energie ϵ_F , aufgetragen über den Winkel ϕ zur k_x -Achse (siehe Skizze) bei $t' = 0.8t$, $T = 0.05t$ und halber Füllung. Die Skizze auf der rechten Seite zeigt die elliptische Fermifläche in der Quadratgitter-Darstellung der BZ. Das schraffierte Dreieck bezeichnet dabei den irreduziblen Teil der BZ. Die verbleibenden Teile der Fermilinie lassen sich mit Symmetrietransformationen aus den dargestellten erzeugen.

4.3 Die Selbstenergie

Wie auch bei dem $t - t' - U$ Modell auf dem Quadratgitter liegt auf dem anisotropen Dreieckgitter aufgrund der überwiegenden Streuung mit den Impulsen des Paramagnon-Doppelpicks bei einigen Parameterkombinationen eine anisotrope Selbstenergie auf der Fermifläche vor.⁴

Abb. 4.20 stellt die Ein-Teilchen-Streurate, also $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}}(\epsilon_F)$, des anisotropen Dreieckgitters mit $t' = 0.8t$ auf einem Viertel der Fermifläche in Abhängigkeit von der Hubbard-Abstoßung U dar. Erwartungsgemäß steigt die Streurate mit U . Ab $U = 6t$ wird ihre Anisotropie mit einem breiten Maximum von ca. $\pm 20^\circ$ um die Richtung $\phi = 0^\circ$ und Minima entlang der BZ-Diagonalen sichtbar.

In Abb. 4.20 werden die Quasiteilchen in der Region bei $\phi = 0^\circ$ um bis zu 40% stärker gestreut als jene in Richtung $\phi = \pm 45^\circ$. Auf eine Benennung dieser Regionen analog zu den auf dem Quadratgitter gefundenen *hot spots*

⁴Die Fermilinie der Abbildungen 4.20, 4.21, 4.25 und 4.41 wird mit einer kubischen Spline-Interpolation der Dispersion bestimmt, die ursprünglich auf einem 64×64 Gitter vorliegt. Analog wird auch die Selbstenergie am Ort der Fermilinie interpoliert.

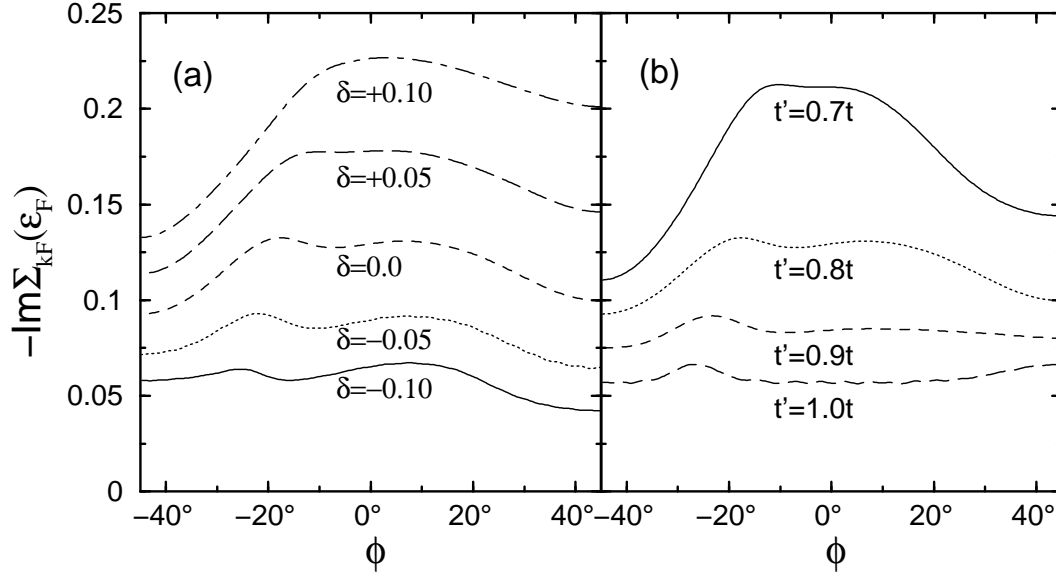


Abbildung 4.21: Der Imaginärteil der Selbstenergie auf der Fermilinie und bei der Fermi-Energie ϵ_F aufgetragen über den Winkel ϕ zur k_x -Achse bei $T = 0.05t$, $U = 6t$ in Abhängigkeit von (a) der Dotierung bei $t' = 0.8t$, (b) der diagonalen Kopplung t' bei halber Füllung.

wird hier verzichtet, da letztere deutlich schärfer begrenzt sind als die vorliegenden. Bei Veränderung der Temperatur bleibt die Lage der Region starker Streuung konstant.

In Abb. 4.21 sind die Veränderungen der Streuraten mit der Dotierung sowie der diagonalen Kopplung dargestellt. Eine Erklärung dieses Verhaltens liefern die Nesting-Eigenschaften der Fermifläche, die im folgenden Abschnitt besprochen werden.

4.3.1 Nesting

Der Begriff Nesting beschreibt eine Konfiguration, bei der quasi-eindimensionale parallele Teile der Fermifläche mit einem Wellenvektor verbunden werden können. Gibt es eine Wechselwirkung, deren Impulsübertrag diesem Nesting-Vektor entspricht, so sind niederenergetische Teilchen-Loch-Anregungen möglich.

Bei halber Füllung liegt im $t-U$ Modell auf dem Quadratgitter der Spezialfall von perfektem Nesting vor. Mit den antiferromagnetischen Wellenvektoren $\mathbf{Q}_{SQL1,2} = (\pi, \pm\pi)$ ist dort die Nesting-Bedingung $\epsilon_{\mathbf{k}} = -\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}_{SQL1,2}}$ für jeden

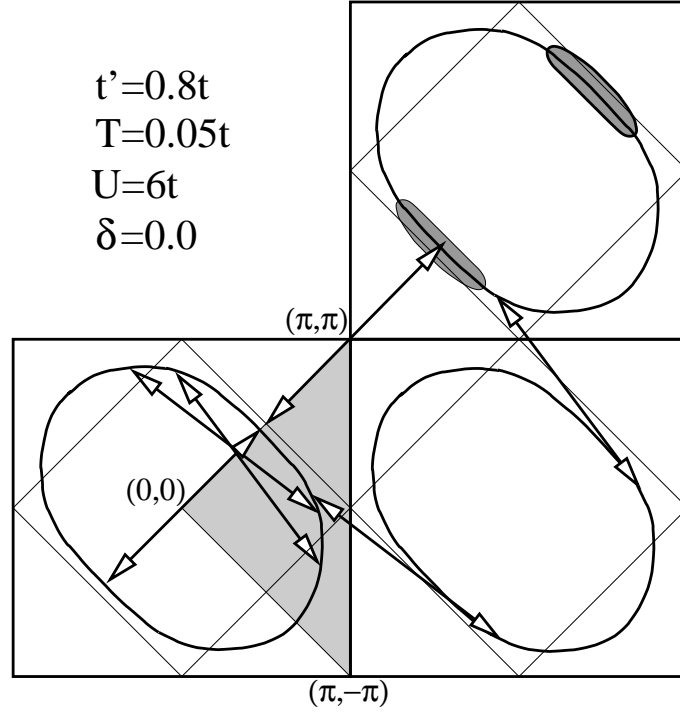


Abbildung 4.22: Schematische Darstellung der Nesting-Situation auf dem anisotropen Dreiecksgitter exemplarisch für einen Parametersatz. Die Pfeile, die Teile der Fermiflächen verbinden, bezeichnen die verschobenen Wellenvektoren der Paramagnon-Peaks. Die schraffierten Flächen oben rechts stellen die verschobene Contour bei 90% der Höhe des Paramagnon-Doppelpeaks dar. Das schraffierte Dreieck unten links bezeichnet den irreduziblen Teil der BZ.

Punkt der Dispersion und speziell für die Umgebung der Fermifläche erfüllt. Die Nesting-Bedingung führt in RPA zu einer Divergenz in $\chi_{\mathbf{Q}}^0(\omega = 0)$ aus Gl. (3.4) und macht das System in dieser Näherung nach dem verallgemeinerten Stoner-Kriterium bei beliebig kleinem U instabil gegenüber antiferromagnetischer Ordnung.

Die Nesting-Situation auf dem anisotropen Dreiecksgitter wird in Abb. 4.22 dargestellt. Ein Impulsübertrag mit einem kommensurablen Wellenvektor des Quadratgitters $\mathbf{Q}_{SQL2} = (\pi, -\pi)$ ist an zwei Schnittpunkten der Fermifläche mit der magnetischen BZ des Quadratgitters möglich. Die mit \mathbf{Q}_{SQL2} verbundenen Teile der Fermifläche sind nicht parallel, was jedoch teilweise von der flachen Dispersion an den Endpunkten kompensiert wird. Bei dem dargestellten Parametersatz beträgt die Wechselwirkung bei \mathbf{Q}_{SQL2} ca. 70% des Paramagnon-Doppelpeaks. Die Pfeile in Abb. 4.22 bezeichnen die

Impulsüberträge der jeweils zwei Maxima der T_{sf} -Streumatrix in Richtung \mathbf{Q}_{SQL1} und nahe \mathbf{Q}_{SQL2} (vgl. auch Abb. 4.10).

Abb. 4.22 liefert eine Erklärung für die Doppelpeakstruktur des Systems mit $t' = 0.8t$ bei halber Füllung. Die elliptische Fermifläche nähert sich in großen Bereichen um $\pm(\pi/2, \pi/2)$ an die magnetische BZ des Quadratgitters an. Zwischen diesen Regionen sind Impulsüberträge von fast \mathbf{Q}_{SQL1} möglich, nämlich $(\pi - x, \pi - x)$ innerhalb einer Fermifläche und $(\pi + x, \pi + x)$ zwischen benachbarten Fermiflächen. Die Höhenlinie von 90% der beiden Peaks schmiegt sich an die Krümmung der Fermifläche an diesen Stellen an.

Allerdings wird nach dieser Erklärung ein Maximum der Streuung nicht bei $\phi \approx 0^\circ$, sondern bei $\phi = \pm 45^\circ$ erwartet. Maßgeblich beeinflusst wird die Ein-Teilchen-Streureate nicht allein von den Vorzugsrichtungen der Spinfluktuation, sondern auch von den Zustandsdichten der Quasiteilchen an den Punkten der Fermifläche, zwischen denen die Streuung stattfindet. Die Zustandsdichte ist nahe der Sattelpunkte der Dispersion, z.B. bei $(\pi, 0)$, (siehe Abschnitt 4.5) maximal. Die Bereitstellung von Quasiteilchen und unbesetzten Zuständen erzeugt die Region starker Streuung um $\phi = 0^\circ$.

Mit der Dotierung vergrößert sich das Volumen der Fermifläche, was in Richtung $\phi = +45^\circ$ eine weitere Annäherung an die magnetische BZ des Quadratgitters mit sich bringt. In Richtung $\phi = 0^\circ$ nähert sich die Fermifläche an den oben genannten Sattelpunkt, was die lokale Zustandsdichte vergrößert. Diese verursacht die Erhöhung der Streureate mit der Dotierung in diesem Bereich.

Die Streuung bei $\phi = -45^\circ$ erklärt das in Abb. 4.17 dargestellte Plateau in Richtung \mathbf{Q}_{SQL2} . Mit wachsendem t' dehnt es sich aus, was die Zunahme der elliptischen Form der Fermifläche widerspiegelt. Die Veränderung der Fermifläche mit wachsendem t' wirkt der Annäherung an den Sattelpunkt der Dispersion und an den kommensurablen Wellenvektor \mathbf{Q}_{SQL1} entgegen. Es resultiert eine Verringerung der Streureate mit wachsendem t' .

Die hier beobachtete Veränderung der Selbstenergie mit der diagonalen Kopplung t' ist der Arbeit von Louati et al. [75] gegenüberzustellen. Dort werden Spinfluktuationseffekte in den normalleitenden Eigenschaften mit RPA untersucht, ausgehend von der in Abschnitt 2.1.2 erwähnten Tight-Binding Parametrisierung des effektiven Dimer-Modells mit quasi-eindimensionalen Bändern und quasi-zweidimensionalen Taschen.

Die Abhängigkeit der Nesting-Eigenschaften von t' stimmt qualitativ mit der in [75] gefundenen überein. Den quasi-eindimensionalen Bändern entsprechen dabei die mit \mathbf{Q}_{SQL1} verbundenen Teile der vorliegenden Fermifläche. Dies bestätigt zum einen die Relevanz des Dimer-Modells nach [5]. Zum anderen unterstreichen beide Ergebnisse die Identifikation der diagonalen Kopplung als proportional zum Druck im gemeinsamen Phasendiagramm der κ -(ET)₂X.

4.3.2 Die Ein-Teilchen-Streureate

Die Impuls- und Frequenzabhängigkeiten, die die inverse Lebensdauer $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}}(\epsilon_F)$ bestimmen, werden deutlich bei der Betrachtung von Gl. (3.1), fortgesetzt auf die reelle Achse

$$-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}}(\omega) = \frac{U^2}{N} \sum_{\mathbf{q}} \int \frac{d\nu}{2\pi} A_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}(\omega - \nu) \text{Im}T_{sf}(\mathbf{q}, \nu) \left(n_B(\nu) - n_F(\nu - \omega) \right). \quad (4.7)$$

Hierbei sind n_B und n_F die Bose- und Fermiverteilung. Sie beschränken das Intervall der Frequenzintegration auf einen Bereich der Breite $T + \omega$ um die Fermi-Energie. Die inverse Lebensdauer $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}}(\epsilon_F)$ ist also eine Faltung der Spektralfunktion $A_{\mathbf{k}}(\omega)$ mit $\text{Im}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega)$. Der Beitrag von $T_{\rho\rho}$ zur effektiven Wechselwirkung kann vernachlässigt werden. An der hauptsächlich interessanten niederenergetischen Streuung nehmen Quasiteilchen mit einer Energie $\approx \epsilon_F \Leftrightarrow \omega \approx 0$, also nahe der Fermilinie, teil. Der überwiegende Beitrag von $\text{Im}T_{sf}$ zu $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}}(\omega)$ kommt von den Impulsen an den Paramagnon-Peaks. Abb. 4.23 verdeutlicht den Einfluß der Spinfluktationsfrequenz ω_{sf} auf die niederenergetische Streureate. Da auf dem (an)isotropen Dreieckgitter nahezu überall $\omega_{sf} > T$ ist, trägt lediglich ein kleiner Teil von $\text{Im}T_{sf}$ in dem Intervall der Breite T zu $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}}(\epsilon_F)$ bei. Erst der Übergang zu endlichen Anregungsenergien $\omega > \omega_{sf}$ verbreitert das Intervall soweit, daß wesentliche Teile von $\text{Im}T_{sf}$ berücksichtigt werden. Im $t - t' - U$ Modell auf dem Quadratgitter liegt hingegen schon bei mittlerer Hubbard-Abstoßung der Fall $\omega_{sf} < T$ am Paramagnon-Peak vor, so daß nahezu das gesamte Gewicht von $\text{Im}T_{sf}(\mathbf{Q}_{SQL}, \omega)$ innerhalb des Integrationsintervalls der Breite T liegt und zu $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}}(\epsilon_F)$ beiträgt [66].

Mit $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}}(\epsilon_F)$ werden niederenergetische Anregungen an der Fermifläche betrachtet. Der verglichen mit dem Quadratgitter kleine Beitrag der Frequenzintegration kann teilweise von den Paramagnonen kompensiert werden. Aufgrund ihrer erheblichen Ausdehnung im Impulsraum tragen auf dem Dreieckgitter große Teile der BZ zu $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}}(\epsilon_F)$ bei.

In den folgenden Abschnitten werden die Energie- und Temperaturabhängigkeit der Streureate an der Fermifläche mit den Eigenschaften einer normalen Fermiflüssigkeit verglichen.

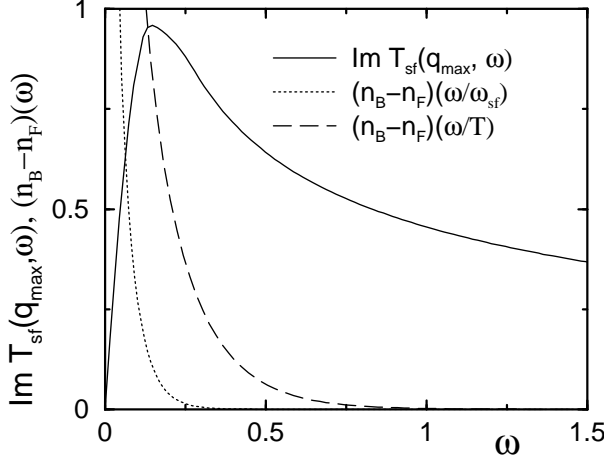


Abbildung 4.23: $\text{Im}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega)$ am Ort des Paramagnon-Peaks $\mathbf{q} = 7/8(\pi, \pi)$ für $t' = 0.8t$, $T = 0.05t$, $U = 6t$ und $\delta = 0$ sowie das von $(n_B - n_F)(\omega)$ in Gl. (4.7) begrenzte Integrationsintervall zum einen der Breite ω_{sf} zum anderen der Breite T .

4.3.3 $\text{Im}\Sigma$ nahe der Fermi-Energie

Für die Frequenzabhängigkeit der Streurrate gilt nahe der Fermi-Energie $\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\omega \rightarrow 0) \propto \omega^2$, da der Beitrag jedes der mindestens zwei am Streuprozess beteiligten Teilchen linear in der Energie ist.

Wie Abb. 4.24 an einigen Beispielen zeigt, wird die um die Fermi-Energie erwartete quadratische Frequenzabhängigkeit bei allen hier untersuchten Parametersätzen des (an)isotropen Dreieckgitters beobachtet. Erklärt wird dies mit der in Abb. 4.23 illustrierten Beschränkung des in $\text{Im}\Sigma$ eingehenden Frequenzintervalls. Da hier fast überall $\omega_{sf} > T$ ist, werden große Teile von $\text{Im}T_{sf}$ erst bei endlichen Energien berücksichtigt. Der langsame Abfall von $\text{Im}T_{sf}$ oberhalb von ω_{sf} führt zu einem nahezu linearen Anstieg von $\text{Im}\Sigma|_{|\omega| > \omega_{sf}}$.

Die im Vergleich zum Quadratgitter große Spinfluktationsfrequenz sorgt für ein Ausbleiben der dort gefundenen anormalen Maxima in $\text{Im}\Sigma$ bei der Fermi-Energie [135] oder um ω_{sf} dazu verschoben [66].

4.3.4 Temperaturabhängigkeit der Streurrate

Der für niederenergetische Streuung verfügbare Phasenraum wächst aufgrund der Aufweichung der Fermikante an beiden Endpunkten des Streuprozesses proportional zu T , so daß für die Temperaturabhängigkeit der Streurrate $\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\omega \rightarrow 0) \propto T^2$ zu erwarten ist.

Abb. 4.25(a) zeigt, daß $\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\epsilon_F) \propto T^2$ auf dem (an)isotropen Dreieckgitter nur für kleine Temperaturen erfüllt ist. Sowohl in den Regionen kleiner

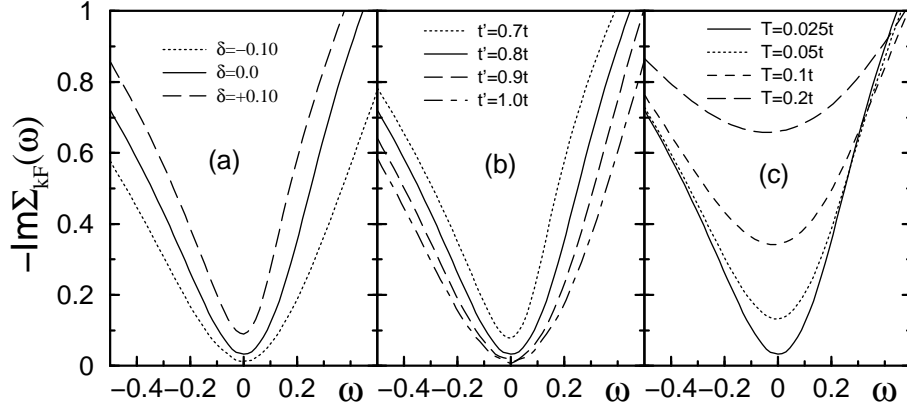


Abbildung 4.24: Frequenzabhängigkeit von $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\omega)$ mit $\mathbf{k}_F = (13/16\pi, 0)$ in der Umgebung der Fermi-Energie bei Variation der
 (a) Dotierung ($t' = 0.8t$, $T = 0.025t$, $U = 6t$), (b) diagonalen Kopplung ($T = 0.025t$, $U = 6t$, $\delta = 0$) und (c) Temperatur ($t' = 0.8t$, $U = 6t$, $\delta = 0$).

Streureate an der Fermifläche in Richtung $(\pi, \pm\pi)^5$ als auch in denen großer Streureate nahe $(\pi, 0)$ existiert ein Übergang zu linearem Anstieg mit T . Bei tiefen Temperaturen legt Abb. 4.25 die Extrapolation $\lim_{T \rightarrow 0} \text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\epsilon_F) \rightarrow 0$ nahe, was dem Verhalten einer normalen Fermiflüssigkeit entspricht.

Im Hubbard-Modell auf dem Quadratgitter wird in der FLEX-Näherung ein linearer Anstieg von $\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\epsilon_F, T)$ bis hinunter zu $T = 0.02t$ gefunden [66]. Dort legt ω_{sf} die Energieskala fest, unterhalb der das Fermiflüssigkeitsverhalten für sehr kleine Temperaturen wiederhergestellt wird [62].

Die Übergangstemperatur T' ⁶ vom Tieftemperaturbereich zum Bereich des linearen Anstiegs wird in Abb. 4.25(b) untersucht. Bemerkenswerterweise fällt T' ab $U \geq 4t$ schneller in den Bereichen geringerer Streureate bei $\phi = \pm 45^\circ$. Der monotone Abfall von T' mit U entspricht der Identifikation der Hubbard-Abstoßung mit dem inversen Druck im gemeinsamen Phasendiagramm der $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ aus Abschnitt 2.1.1.

Der Diskussion des linear in T wachsenden Widerstands im Zusammenhang mit der ebenso ansteigenden Ein-Teilchen-Streureate in [136] folgend, wird

⁵Die Richtung (π, π) entspricht dem Winkel $\phi = +45^\circ$ in den Abb. 4.20 und 4.21. Die Temperaturabhängigkeit von $\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\epsilon_F)$ in Richtung $(\pi, -\pi)$ bzw. $\phi = -45^\circ$ ist nahezu identisch zu der bei $\phi = +45^\circ$.

⁶ T' wird bestimmt mit einem Fit
 $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\epsilon_F, T) = aT^2\Theta(T' - T) + (bT - (aT'^2 - bT'))\Theta(T - T')$
 mit den Parametern a , b und T' .

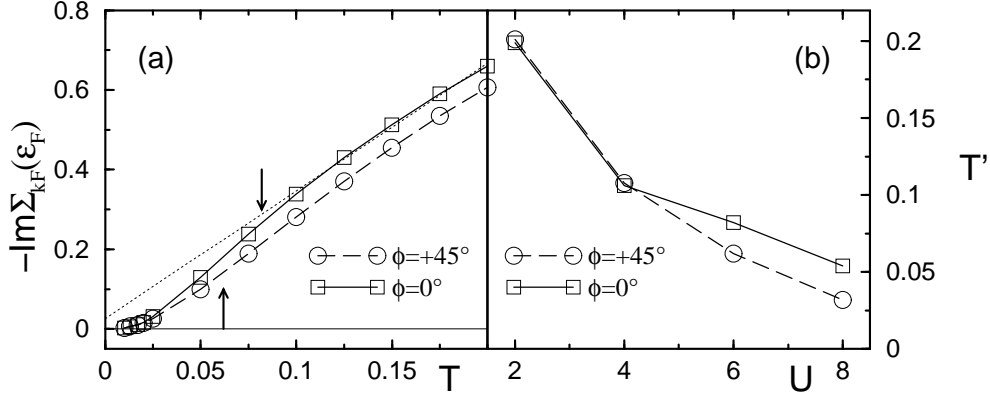


Abbildung 4.25: (a) Temperaturabhängigkeit von $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\epsilon_F)$ für $t' = 0.8t$, $U = 6t$, $\delta = 0$ an den Orten minimaler und maximaler Streuung $\phi = +45^\circ$ bzw. $\phi = 0^\circ$. Die Pfeile markieren die Übergangstemperatur T' von $-\text{Im}\Sigma \propto T^2$ zum Bereich des linearen Anstiegs. Die gepunktete Linie bezeichnet einen linearen Hochtemperatur-Fit für $\phi = 0^\circ$ und $T \geq 0.1t$. In (b) ist die Übergangstemperatur in Abhängigkeit von der Hubbard-Abstoßung aufgetragen.

T' nun mit experimentellen Ergebnissen verglichen. Mit $t \approx 52\text{meV}$ für die $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ (vgl. Abschnitt 2.1.2) entspricht $T' \sim 0.075t \sim 46\text{K}$ bei der Wechselwirkungsstärke $U = 6t$. In $\kappa\text{-(ET)}_2\text{Cu(SCN)}_2$ sowie $\kappa\text{-(ET)}_2\text{Cu[N(CN)}_2\text{]Br}$ wird bei $T \sim 45\text{--}50\text{K}$ eine Änderung der Steigung des temperaturabhängigen Widerstands $\rho(T)$ beobachtet [39, 40]. Diese wird von K. Kanoda als Übergang zwischen dem Fermiflüssigkeitsregime bei tiefen Temperaturen und einem Bereich mit starken antiferromagnetischen Fluktuationen lokalisierter Spins bei hohen Temperaturen interpretiert [7, 41]. Die Übergangstemperatur T' liegt in dem experimentell gefundenen Temperaturbereich und bestätigt so die oben genannte Annahme einer effektiven Hubbard-Abstoßung von $U \sim 4t - 6t$ im Dimer-Modell der $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$.

4.4 Die Ein-Teilchen-Spektralfunktionen

Die Tatsache, daß bei den hier betrachteten (an)isotropen Dreiecksgittern fast überall $\omega_{sf} > T$ ist und somit die Selbstenergie mehr von der Impulsraumstruktur als der Energieskala der Spinfluktuationen beherrscht wird, schlägt sich auch in den Ein-Teilchen-Spektralfunktionen nieder.

Für eine normale Fermiflüssigkeit wird nahe der Fermi-Energie ein scharfer

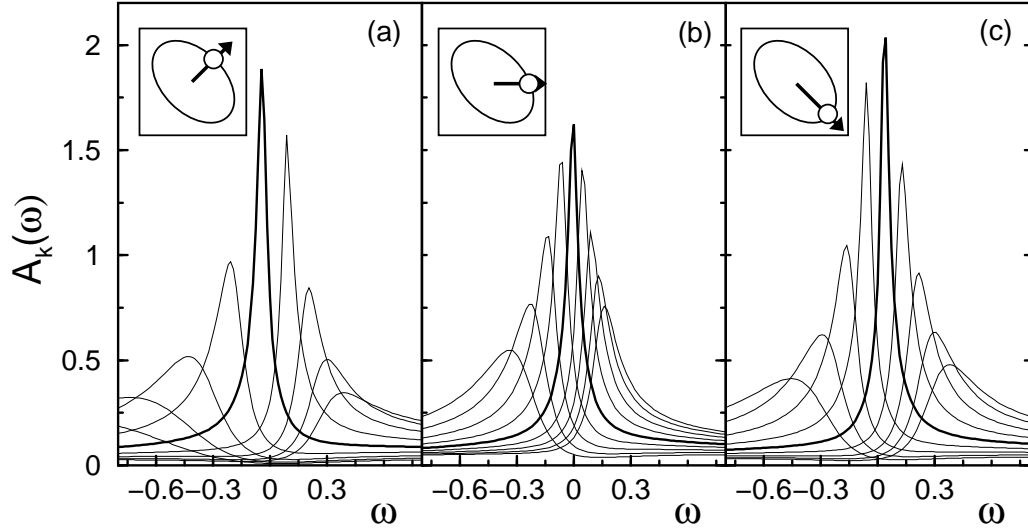


Abbildung 4.26: Spektralfunktionen in der Umgebung der Fermilinie für $t' = 0.8t$, $U = 6t$, $\delta = 0.0$ und $T = 0.05t$ in Richtung (a): $10/32(\pi, \pi) \rightarrow 18/32(\pi, \pi)$, (b): $21/32(\pi, 0) \rightarrow 29/32(\pi, 0)$, (c): $18/32(\pi, -\pi) \rightarrow 26/32(\pi, -\pi)$ in Schritten von $1/32(\pi, \pm\pi)$ bzw. $1/32(\pi, 0)$. Die Spektralfunktionen an der Fermi-Energie sind hervorgehoben.

Quasiteilchenpeak in Form einer Lorentz-Kurve erwartet. Ein solcher Quasiteilchenpeak wird für alle hier betrachteten Parameterkombinationen des anisotropen Dreieckgitters gefunden. Abb. 4.26 zeigt für den Ausgangsparametersatz $t' = 0.8t$ und $\delta = 0$ Spektralfunktionen entlang dreier Wege, die die Fermilinie kreuzen. Die Verbreiterung des Peaks rührt von der endlichen Lebensdauer der Quasiteilchen her. Die geringfügige Unterdrückung der Spektralfunktion nahe ϵ_F in Richtung $(\pi, 0)$ verglichen mit den beiden anderen Richtungen ist auf die erhöhte Ein-Teilchen-Streurate in dieser Region zurückzuführen.

Die renormierungsbedingt flache Dispersion in der Umgebung der Fermi-Energie wird ebenfalls in Abb. 4.26(b) deutlich. Hier liegen die Quasiteilchenpeaks nah beieinander und die zu $\mathbf{k}_F = 25/32(\pi, 0)$ benachbarten Spektralfunktionen haben nahezu die gleiche Höhe und Halbwertsbreite.

Eine Variation der Dotierung innerhalb von $\delta = \pm 0.1$ um halbe Füllung bei $t' = 0.8t$, $U = 6t$, $T = 0.05t$ führt hauptsächlich zu einer veränderten Höhe des Quasiteilchenpeaks bei ϵ_F und der damit verbundenen Änderung der Halbwertsbreite. Ebenso wie bei einer Erhöhung von $t' = 0.7t$ auf $t' = t$ entspricht diese Variation der Halbwertsbreite dem Verhalten der Ein-Teilchen-Streurate aus Abb. 4.21.

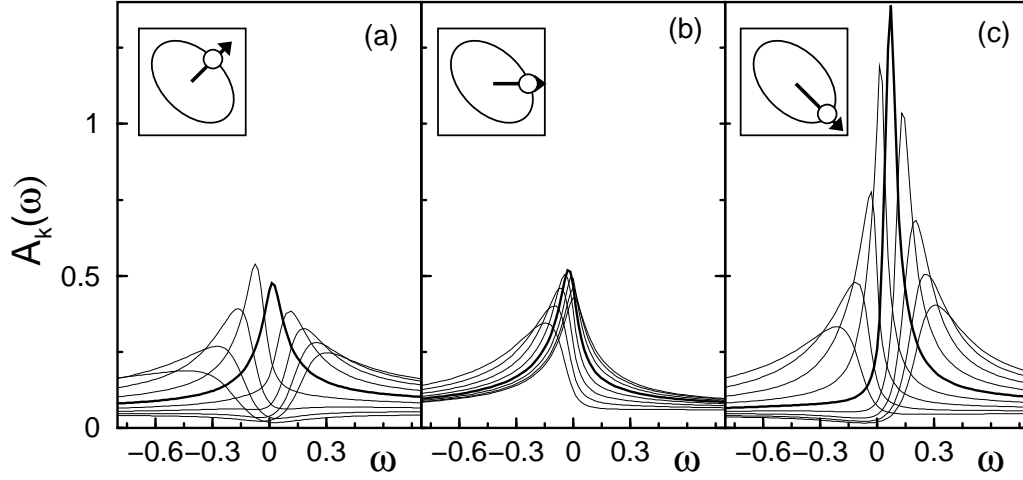


Abbildung 4.27: Spektralfunktionen in der Umgebung der Fermilinie für $t' = 0.7t$, $U = 8t$, $\delta = +0.2$ und $T = 0.025t$ in Richtung (a): $12/32(\pi, \pi) \rightarrow 20/32(\pi, \pi)$, (b): $24/32(\pi, 0) \rightarrow 31/32(\pi, 0)$, (c): $19/32(\pi, -\pi) \rightarrow 27/32(\pi, -\pi)$ in Schritten von $1/32(\pi, \pm\pi)$ bzw. $1/32(\pi, 0)$. Die Spektralfunktionen an der Fermi-Energie sind hervorgehoben.

In Abb. 4.27 ist für den Grenzfall $t' = 0.7t$, $\delta = +0.2$ die starke Renormierung an der Unterdrückung der Quasiteilchenpeaks in Richtung (π, π) und $(\pi, 0)$ zu beobachten.

4.5 Globale und lokale Zustandsdichte

Die normierte Summe aller Spektralfunktionen der BZ ergibt die Zustandsdichte $\rho(\omega)$ der Quasiteilchenanregungen. Vor der Diskussion der renormierten Zustandsdichte wird in Abb. 4.28 zunächst die Tight-Binding Zustandsdichte der anisotropen Dreieckgitter betrachtet.

Sowohl die Tight-Binding Dispersion des Quadratgitters als auch die des isotropen Dreieckgitters weisen jeweils eine logarithmische Singularität in der Zustandsdichte auf (aufgrund perfekten Nestings und der Van-Hove-Singularität bei $(\pi, 0)$ doppelt logarithmisch im Fall des Quadratgitters, einfach logarithmisch im Fall des Dreieckgitters [116]). Auf dem Quadratgitter liegt sie an der Fermi-Energie und die Zustandsdichte ist Teilchen-Loch-symmetrisch. Auf dem Dreieckgitter liegt sie bei $\omega = +2t$, die Teilchen-Loch-Symmetrie ist, wie in Abschnitt 2.4 beschrieben, aufgehoben.

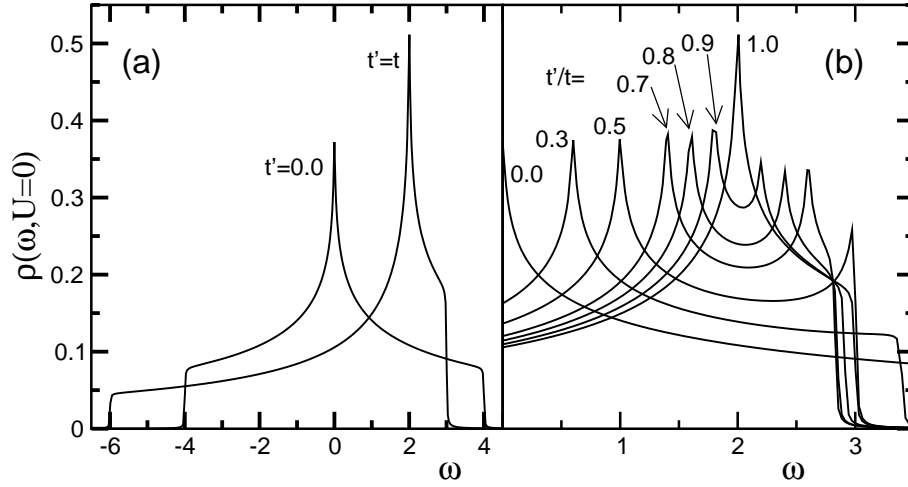
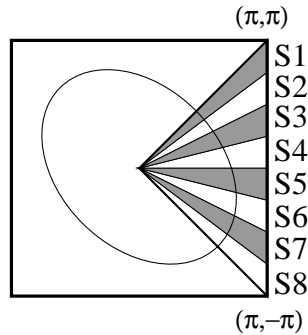


Abbildung 4.28: Tight-Binding Zustandsdichten der anisotropen Dreieckgitter. In (a) wird die Teilchen-Loch-symmetrische Zustandsdichte des Quadratgitters der asymmetrischen des isotropen Dreieckgitters gegenübergestellt, in (b) sind die Dispersionen der anisotropen Dreieckgitter im Bereich um die Singularitäten dargestellt. In beiden Abbildungen ist $\mu = 0$.⁷



Die unrenormierte Zustandsdichte der anisotropen Dreieckgitter weist für $t' \geq 0.5t$ zwei Maxima auf, die sich mit wachsendem t' einander annähern, um bei $t' = t$ zusammenzufallen. Ihr Ursprung wird mit der Betrachtung lokaler Zustandsdichten näher beleuchtet. Dazu wird der irreduzible Teil der BZ gemäß der nebenstehenden Abbildung in die Sektoren S1-S8 aufgeteilt und für jeden Sektor die lokale Zustandsdichte

$$\rho^{1-8}(\omega) = \frac{4 \cdot 8}{N} \sum_{\mathbf{k} \in S1-S8} A_{\mathbf{k}}(\omega) \quad (4.8)$$

bestimmt.

⁷Die Abbildungen zeigen $1/N \sum_{\mathbf{k}} A_{\mathbf{k}}(\omega + i\gamma)$ bei $U = 0$ mit $\gamma = 0.01$ auf einem 2048×2048 \mathbf{k} -Gitter. Der endliche Abstand γ zur reellen Achse verbreitert die dort scharfen Ränder und die Singularitäten geringfügig. Um die numerischen Artefakte um $\omega = 0$, die aus der Summation von scharfen Quasiteilchenpeaks resultieren, zu reduzieren, war eine Abwägung zwischen der verwendeten Verbreiterung und einer weiteren Vergrößerung des Gitters notwendig.

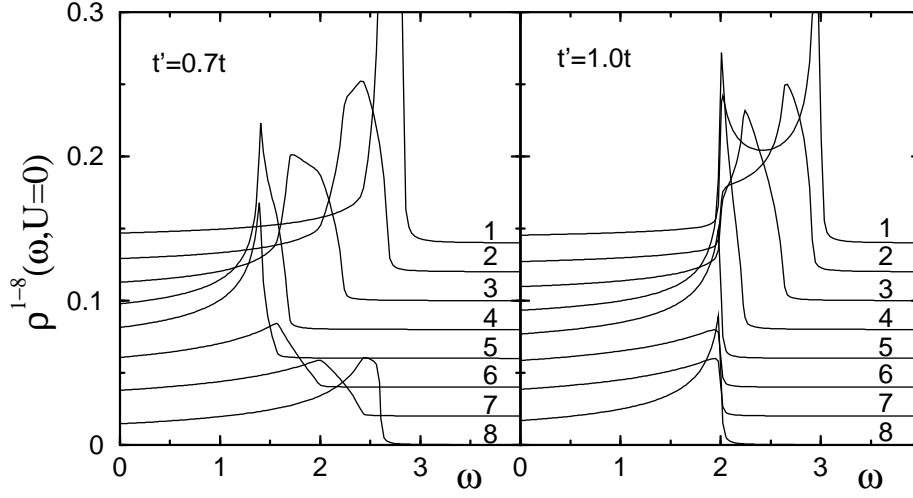


Abbildung 4.29: Unrenormierte lokale Zustandsdichten für $t' = 0.7t$ und $t' = t$ der Sektoren $S1$ - $S8$ (siehe Text, bestimmt analog zu Abb. 4.28). Für $t' = t$ sind die lokalen Zustandsdichten der Sektoren $S6$ und $S7$ sowie $S5$ und $S8$ aus Symmetriegründen jeweils identisch.

Offensichtlich rührt der hauptsächliche Beitrag zum linken Maximum der Zustandsdichte sowohl für das anisotrope als auch das isotrope Dreieckgitter von den Sektoren $S4$ und $S5$ nahe des Sattelpunkts bei $(\pi, 0)$ her. Auch auf dem Quadratgitter stammt das spektrale Gewicht der Singularität von dieser Region. Das spektrale Gewichte des rechten Maximums stammt hingegen überwiegend aus Sektor $S1$ nahe des Impulses \mathbf{Q}_{SQL1} . Bei Erhöhung von t' bis $t' = t$ wird die lokale Zustandsdichte in diesem Bereich unterdrückt.

Mit dem chemischen Potential μ wird die Zustandsdichte entlang der Frequenzachse so verschoben, daß auch bei wachsender Hubbard-Wechselwirkung die Bandfüllung fixiert bleibt. In Abb. 4.30 wird die aus der Asymmetrie der Zustandsdichte auf dem (an)isotropen Dreieckgitter resultierende Position des Maximums in $\rho(\omega)$ betrachtet. Bei halber Füllung liegt die Zustandsdichte bei allen $t' > 0$ unterhalb des Maximums. Da der Hauptteil des spektralen Gewichts zu positiven Energien verschoben ist, erreicht die Fermi-Energie das Maximum der Zustandsdichte bei den hier untersuchten Gittertopologien erst bei Dotierungen von bis zu $\delta = +0.4$.

Wie Abb. 4.31 zeigt, wäscht die Hubbard-Wechselwirkung die Konturen der Zustandsdichte stark aus. Die Singularität bei hohen Frequenzen verschwindet dabei vollständig. Die Renormierung betrifft also die Sektoren $S1$ und $S8$ stark, während das spektrale Gewicht der Sektoren $S4$ und $S5$ weitgehend erhalten bleibt.

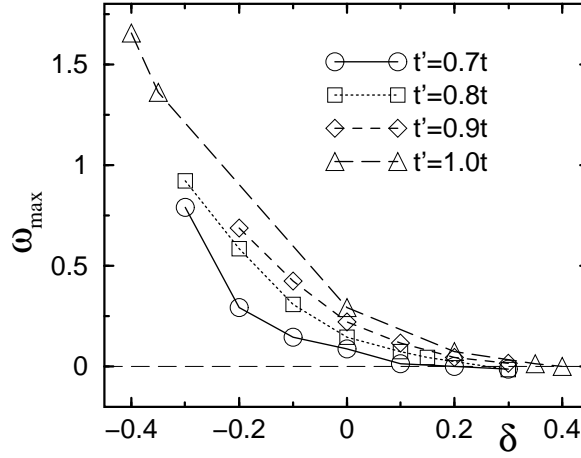


Abbildung 4.30: Position des Maximums ω_{\max} der renormierten Zustandsdichten $\rho(\omega)$ für $U = 6t$ und $T = 0.025t$.

In Abb. 4.31 wurden die Parameter $t' = 0.7t$ und $\delta = +0.2$ gewählt, da hier der verbleibende Peak in der Zustandsdichte an der Fermi-Energie liegt und bei großer Hubbard-Abstoßung ein kleines lokales Minimum mit einer Tiefe von 0.3%⁸ in der Zustandsdichte auftritt. Bei $\delta = +0.1$ liegt das Maximum der Zustandsdichte bei $\approx +0.03t$ und das lokale Minimum ist deutlich kleiner. Für $t' > 0.7t$ wird bei keiner Dotierung ein derartiges lokales Minimum gefunden.

Auf dem Quadratgitter ist der antiferromagnetische Grundzustand des Hubbard-Modells bei halber Füllung von einer Lücke in den Ladungsträgeranregungen begleitet. Ein Vorbote hiervon wird in der FLEX-Näherung auch bei endlichen Temperaturen in Form eines lokalen Minimums im spektralen Gewicht nahe $\omega = 0$ beobachtet und als Pseudolücke bezeichnet. Im $t - U$ Modell tritt sie bereits bei $U = 1.57t$ auf [135], im $t - t' - U$ Modell hängt ihre Ausprägung bei $U = 4t$ von t' ab. Dort entspricht die Dispersion des Minimums der eines Spinwellen-Ansatzes [66].

Da bei $t' = 0.7t$ die stärksten antiferromagnetischen Korrelationen festgestellt wurden (Abschnitt 4.3), das Maximum der renormierten Zustandsdichte als das verschobene Äquivalent zur Van-Hove-Singularität auf dem Quadratgitter identifiziert wurde und bei $\delta = +0.2$ gerade mit der Fermi-Energie zusammenfällt, stellt sich die Frage, ob es sich bei diesem lokalen

⁸Die Tiefe des lokalen Minimums wird als Abstand des Minimums zum kleineren Maximum bestimmt und normiert auf den Betrag dieses Maximums.

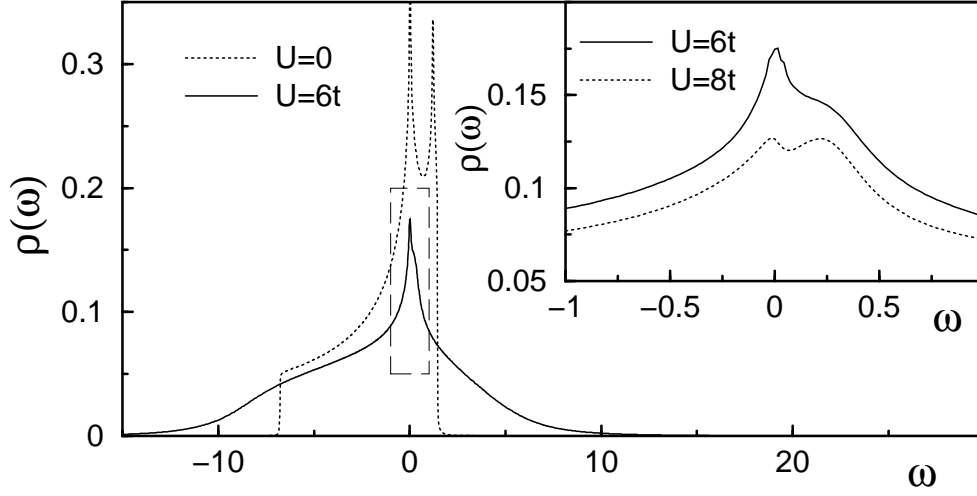


Abbildung 4.31: Unrenormierte und renormierte Zustandsdichte für $t' = 0.7t$, $\delta = +0.2$ und $T = 0.025t$. Das gestrichelte Rechteck bezeichnet den Ausschnitt des Insets. Das rechte Maximum der Tight-Binding Zustandsdichte ist in der renormierten Zustandsdichte vollständig ausgewaschen, das linke Maximum liegt bei der Fermi-Energie. Dort entwickelt sich von $U = 6t$ zu $U = 8t$ aus einer Schulter des Maximums ein lokales Minimum in der Zustandsdichte. Die Tight-Binding Zustandsdichte ist mit dem chemischen Potential der renormierten Greensfunktion ($U = 6t$) verschoben.

Minimum um ein Rudiment der auf dem Quadratgitter gefundenen Pseudolücke handelt.

Die Betrachtung der lokalen Zustandsdichten in Abb. 4.32 ergibt einen Beitrag zum lokalen Minimum aus den Sektoren $S1$ und $S2$ für $U > 6t$. Im $t-t'-U$ Modell des Quadratgitters kommt der maximale Beitrag zur Pseudolücke aus der Umgebung von $(\pi, 0)$ [61]. Dieser Bereich trägt mit den Sektoren $S4$ und $S5$ hier gerade nicht zum Minimum bei. Eine Dispersion des Minimums ist nicht festzustellen. Offenbar wird das lokale Minimum verursacht von der diagonalen Kopplung t' und ist kein Rudiment der auf dem Quadratgitter beobachteten Pseudolücke.

Die Umverteilung von spektralem Gewicht weg von der Fermi-Energie in den Sektoren $S1$ und $S2$ ist eine Konsequenz der starken antiferromagnetischen Spinkorrelationen, deren Maximum für $t' = 0.7t$ und $\delta = +0.2$ bei \mathbf{Q}_{SQL1} liegt. Diese werden im folgenden Abschnitt näher untersucht.

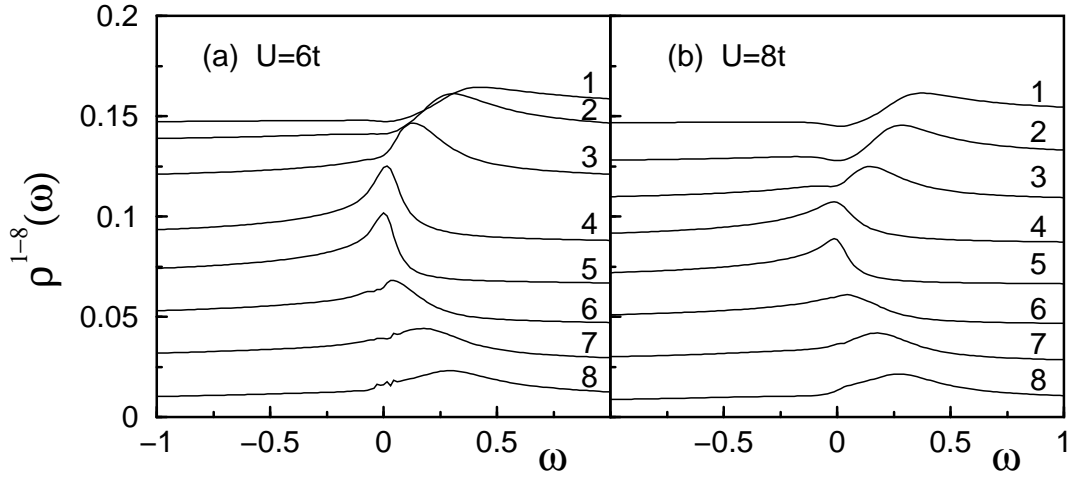


Abbildung 4.32: Lokale Zustandsdichten der Sektoren $S1-S8$ für $t' = 0.7t$, $\delta = +0.2$, $T = 0.025t$ und (a) $U = 6t$, (b) $U = 8t$. Bei $U = 8$ zeigt Abb. 4.31 ein lokales Minimum in der Zustandsdichte dieses Systems.

4.6 Die Paramagnon-Dispersion

Eine Betrachtung des impuls- und frequenz aufgelösten Imaginärteils der T_{sf} -Matrix schließt die Untersuchung der magnetischen Eigenschaften auf dem (an)isotropen Dreieckgitter ab.

Im $t - t' - U$ Modell auf dem Quadratgitter folgt die Position des Maximums von $\text{Im}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega)$, also die Spinfluktationsfrequenz ω_{sf} , in einem Beispiel bei $U = 4t$, $t' = -0.3t$, $T = 0.03t$ und $\delta = 0.025$ qualitativ gut dem Verlauf der Spinwellen-Dispersion des Hubbard-Modells in SDW-Näherung [66].

Eine Anbindung an höhere Wechselwirkungsstärken ist mit der Aussage möglich, daß die Spinwellen-Dispersion in SDW-Näherung auf dem Quadratgitter bei halber Füllung in die des Heisenberg-Modells übergeht [137].

Im Gegensatz zum Quadratgitter wurde in Abschnitt 4.2 bei allen vorliegenden Parameterkombinationen ein deutlicher Abstand zu einer SDW-Instabilität festgestellt.

Die Dispersion des Paramagnons wird in Abb. 4.33 für die anisotropen und isotropen Dreieckgitter bei halber Füllung sowie für die Parameterkombinationen ($t' = 0.7t, \delta = +0.1$) und ($t' = t, \delta = -0.35$) bei $U = 6t$ dargestellt. Für die Vergleichbarkeit der verschiedenen diagonalen Kopplungen t' ist die Betrachtung auf den Weg $(0, 0) \rightarrow (\pi, \pi)$ beschränkt.

In Abb. 4.33(a) ist ein ausgedehnter Bereich hoher Amplitude um den kom-

mensurablen Wellenvektor des Quadratgitters $\mathbf{Q}_{SQL1} = (\pi, \pi)$ zu erkennen. In den Abbildungen 4.33(b)–(e) wandert der verkleinerte Bereich hoher Amplitude in Richtung $(0, 0)$, teilt sich in den Abbildungen 4.33(d) und (e) in zwei Regionen, um in Abb. 4.33(f) am kommensurablen Impuls des Dreieckgitters $\mathbf{Q}_{TL1} = 2/3(\pi, \pi)$ wieder zusammenzulaufen.

In den Bereichen hoher Amplitude von $\text{Im}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega)$ wird die Spinfluktuationsfrequenz minimal. Bei den Abbildungen halber Füllung 4.33(b)–(e) ist die gestrichelt eingezeichnete Paramagnon-Dispersion flach. Auch bei der Parameterkombination ($t' = 0.7t, \delta = +0.1$) ist keine qualitative Ähnlichkeit mit der Spinwellen-Dispersion auf dem Quadratgitter festzustellen. Vielmehr ist die Spinfluktuationsfrequenz entlang des gesamten Weges von der Größenordnung der Temperatur. Erst im Fall des isotropen Dreieckgitters bei der Dotierung $\delta = -0.35$ tritt ein Verlauf auf, welcher der Dispersion auf dem Quadratgitter ähnlich ist.

Auf dem nicht bipartiten (an)isotropen Dreieckgitter ohne kollineare Ordnung und speziell jenseits halber Füllung wird die Existenz von SDW-Phasen allerdings kontrovers diskutiert. Untersuchungen in Hartree-Fock-Näherung zeigen bei halber Füllung einen Übergang vom paramagnetischen Zustand zu einer inkommensurablen Spindichtewelle bei $U_{c1} \approx 3.97t$ mit kontinuierlich variierendem Wellenvektor und bei $U_{c2} \approx 5.27t$ einen Metall-Isolator-Übergang erster Ordnung [117]. In [116] wird die Untersuchung in Hartree-Fock-Näherung auf endliche Dotierung erweitert. Ein *Slave-Boson* Ansatz findet die beiden Phasenübergänge bei jeweils erhöhter Hubbard-Wechselwirkung von $U_{c1} = 6.68t$ und $U_{c3} = 7.68t$ [118]. Die exakte Diagonalisierung endlicher Systeme zeigt jedoch keine intermediären Phasen, sondern einen direkten Übergang vom Paramagneten zum Mott-Isolator bei $U_{MIT} = 12.07t$ [118].

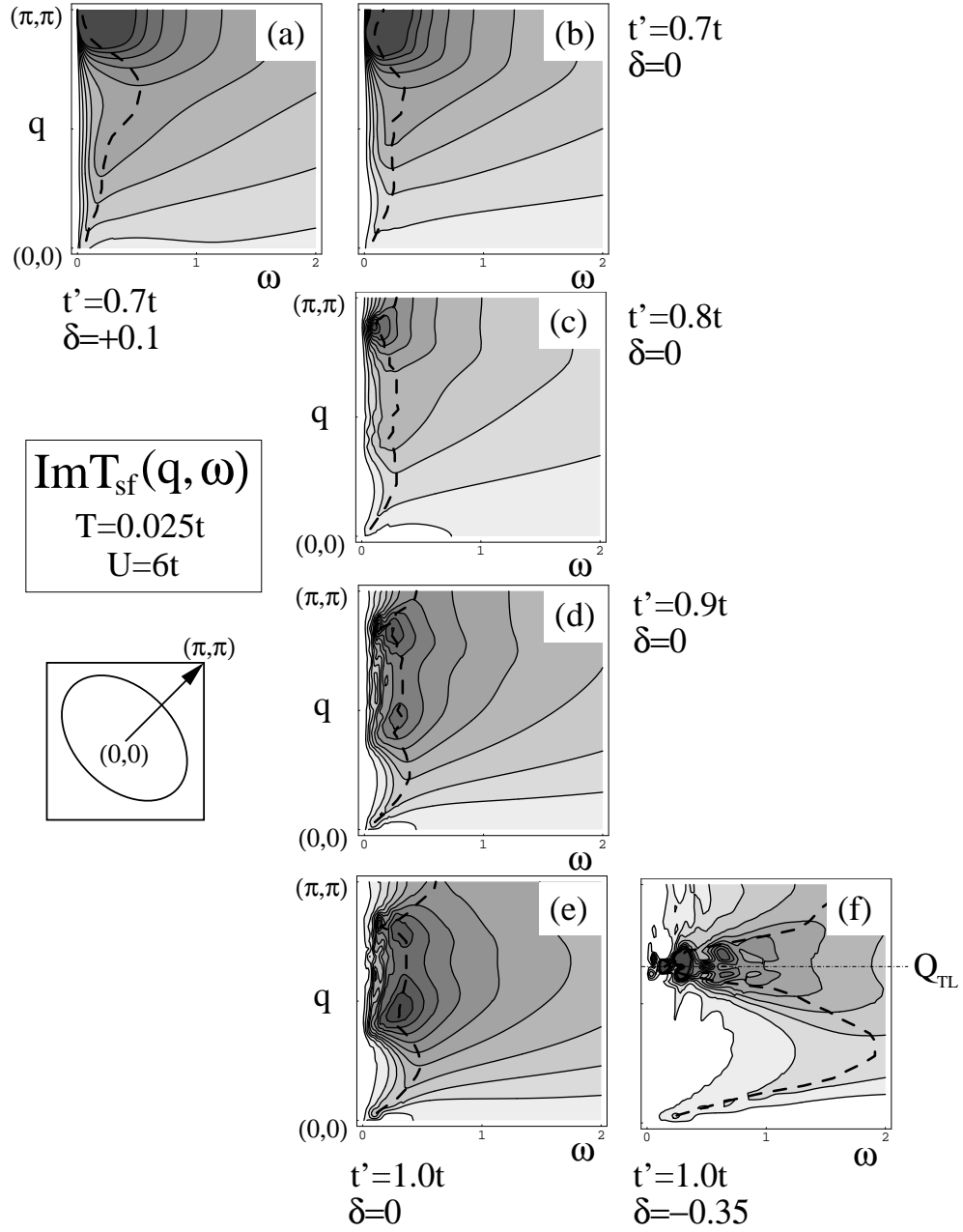


Abbildung 4.33: $\text{Im}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega)$ auf dem (an)isotropen Dreiecksgitter entlang des Weges $(0,0) \rightarrow (\pi,\pi)$ für $t' = 0.7t$ bis $t' = t$, halbe Füllung und die Dotierungen $\delta = +0.1$ sowie $\delta = -0.35$, bei denen Spinfluktuationen mit kommensurablen Impulsen des Quadrat- bzw. Dreieckgitters auftreten. Dunkle Flächen bezeichnen Bereiche mit hohem $\text{Im}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega)$, helle mit niedrigem. Die gestrichelten Linien geben die Dispersion der Spinfluktuationsfrequenz ω_{sf} an. In Bild (f) ist der kommensurable Impuls des isotropen Dreieckgitters \mathbf{Q}_{TL} eingetragen.

4.7 Das isotrope Dreieckgitter

In diesem Abschnitt wird das isotrope Dreieckgitter ($t' = t$) in Hinblick auf eine Modellierung der elektronischen Eigenschaften von $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ bei mittlerer bis starker Hubbard-Abstoßung diskutiert.

Dazu wird hier die in Abschnitt 2.3 besprochene Topologie des isotropen Dreieckgitters mit den Koordinaten k'_x, k'_y verwendet.⁹

In der LDA-Bandstruktur der Ausgangsverbindung NaCo_2O_4 des supraleitenden Natrium-Kobalt-Oxyhydrats zeigen beide $a_{1g} - t_{2g}$ -Bänder, die die niederenergetischen Anregungen nahe der Fermi-Energie charakterisieren, ein lokales Bandminimum im Zentrum der BZ.¹⁰ Mit der in Abschnitt 2.4 eingeführten Teilchen-Loch-Transformation wird das Minimum zu einem lokalen Maximum am Γ -Punkt. Die Berücksichtigung von Hüpfprozessen zu übernächsten Nachbarn mit einem Hüpfmatrixelement $t'' < 0$ erzeugt ein solches Minimum am Γ -Punkt der Tight-Binding Dispersion. Ein Fit an das untere $a_{1g} - t_{2g}$ -Band in Richtung $\Gamma - M$ ergibt den hier im $t - t'' - U$ Modell verwendeten Wert $t'' = -0.45t$. Im folgenden werden Ergebnisse des $t - U$ Modells und des $t - t'' - U$ Modells im Dotierungsbereich zwischen $\delta = -0.35$ und $\delta = +0.35$ gegenübergestellt. Dabei entspricht $\delta = -0.35$ der Dotierung des supraleitenden $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$.

4.7.1 Dispersion und Zustandsdichte

Abb. 4.34(a) zeigt die Tight-Binding Dispersionen der beiden Modelle im untersuchten Dotierungsbereich. Im $t - t'' - U$ Modell ist das lokale Maximum am Γ -Punkt zu erkennen. Die flache Dispersion in der Umgebung des Γ -Punkts bewirkt eine starke Verschiebung des spektralen Gewichts zum unteren Bandende. Dies wird in Abb. 4.34(b) dargestellt. Die Berücksichtigung des Hüpfmatrixelements $t'' = -0.45t$ führt zu einer Singularität bei $\omega \approx -3.5t$ und die Singularität des isotropen Dreieckgitters verschiebt sich zu $\omega \approx +1t$. Der Teil der Dispersion oberhalb der Fermi-Energie im $t - t'' - U$ Modell ist daher deutlich größer ist als im $t - U$ Modell. Die Verschiebung der Dispersion mit der Dotierung δ entspricht der in Abschnitt 4.1.2 besprochenen.

Im $t - U$ Modell reduziert sich der Anteil der Dispersion mit $\epsilon_{\mathbf{k}} > \epsilon_F$ von ca. 42% bei $\delta = -0.35$ auf ca. 14% bei $\delta = +0.35$, im $t - t'' - U$ Modell von ca. 84% bei $\delta = -0.35$ auf ca. 49% bei $\delta = +0.35$.

⁹Die FLEX SK-Gleichungen wurden auf der Quadratgitter-Topologie gelöst und die Transformation $(k_x, k_y) \rightarrow (k'_x, k'_y)$ mit einer zweidimensionalen Spline-Interpolation der impulsabhängigen Funktionen durchgeführt.

¹⁰Die Bilayer-Aufspaltung des $a_{1g} - t_{2g}$ -Bandes wird im folgenden vernachlässigt.

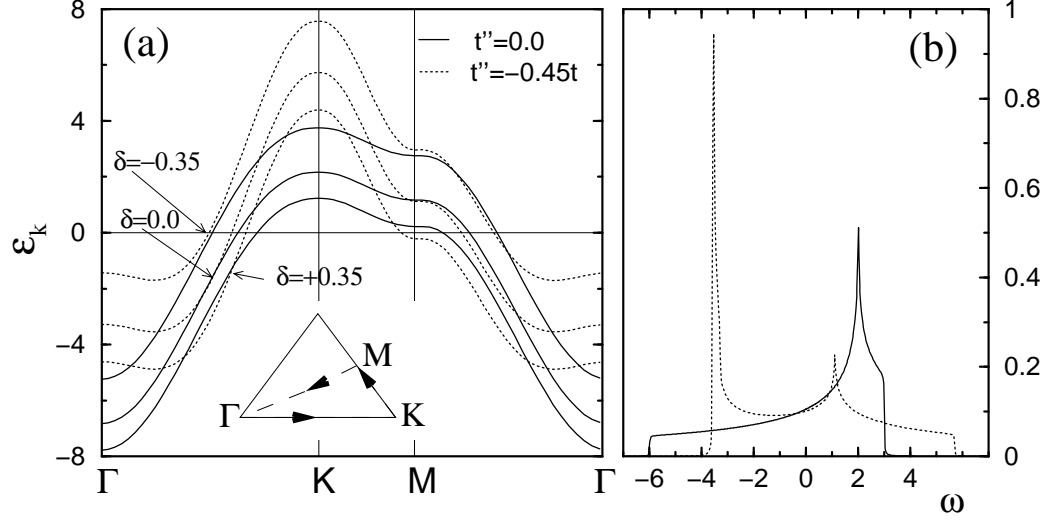


Abbildung 4.34: (a) Tight-Binding Dispersionen des isotropen Dreieckgitters im $t - U$ und $t - t'' - U$ Modell für $\delta = 0, \pm 0.35$ und halbe Füllung auf einem geschlossenen Weg im skizzierten irreduziblen Dreieck. (b) Vergleich der Tight-Binding Zustandsdichten der beiden Modelle analog zu Abb. 4.28. Das mit dem Hüpfmatrixelement $t'' = -0.45t$ zu übernächsten Nachbarn auf dem Dreieckgitter erzeugte lokale Minimum der Tight-Binding Dispersion im Zentrum der BZ verschiebt große Teile des spektralen Gewichts an das untere Bandende.

In beiden Modellen liegen Sattelpunkte der Dispersion an den M -Punkten der hexagonalen BZ. Bei $3/4$ Bandfüllung ($\delta = +0.5$) berührt die unrenormierte Dispersion des $t - U$ Modells die BZ an diesem Punkt, im $t - t'' - U$ Modell bereits unterhalb von $\delta = +0.35$.

Die Abb. 4.35(a) und (b) stellen die renormierten Dispersionen der beiden Modelle im Dotierungsbereich $\delta = \pm 0.35$ bei $T = 0.05t$ und $U = 8t$ dar. Neben den oben besprochenen Eigenschaften tritt hier die bereits in Abschnitt 4.1.2 gefundene renormierungsbedingte Abflachung der Dispersion bei ϵ_F auf. In beiden Modellen ändert sich die Steigung der Dispersion an der Fermilinie in Richtung $\Gamma - K$ nur schwach. Im $t - U$ Modell bei $\delta = +0.35$ wird das Dispersionsplateau um M bis zur Fermi-Energie erniedrigt und vergrößert. Im $t - t'' - U$ Modell bleibt bei $\delta = +0.35$ das Plateau in der renormierten Dispersion bei M unterhalb von ϵ_F .

In beiden Modellen liegt bei $\delta = +0.35$ die Fermilinie an dem ausgedehnten Bereich flacher Dispersion um die Van-Hove-Singularität bei M . Die damit

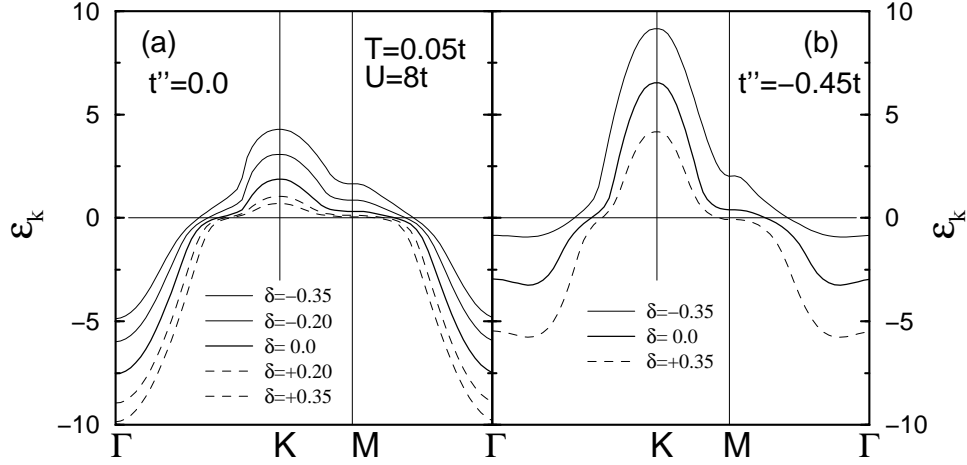


Abbildung 4.35: Renormierte Quasiteilchendisersion des (a) $t - U$ Modells und des (b) $t - t'' - U$ Modells mit $t'' = -0.45t$ auf einem geschlossenen Weg im isotropen Dreieckgitter in einem Dotierungsbereich $\delta = \pm 0.35$ bei $T = 0.05t$, $U = 8t$.

verbundene hohe lokale Zustandsdichte erklärt die Tatsache, daß bei dieser Dotierung das Maximum der gesamten Zustandsdichte mit der Fermi-Energie zusammenfällt. Dies wurde auch in [19] gefunden.

Die Fermilinen beider Modelle werden in Abb. 4.36(a) und (b) gegenübergestellt. Mit wachsender Lochkonzentration nimmt erwartungsgemäß das von der Fermilinie umschlossene Volumen zu. Im $t - U$ Modell ist die Fermilinie bei $\delta = -0.35$ nahezu radialsymmetrisch. Bei $\delta = +0.35$ weist sie die hexagonale Symmetrie der Einheitszelle auf. Qualitativ stimmt die hexagonale Fermifläche des $t - t'' - U$ Modells bei halber Füllung mit kleinen Einbuchtungen an den Kantenmitten gut mit der Fermifläche in LDA-Näherung [59] und der mit ARPES beobachteten [104] überein. In [59] wird allerdings bei $\delta = 0$ ein deutlich kürzerer Nesting-Vektor von ca. $0.8 \mathbf{Q}_{TL}$ gefunden, der gegenüberliegende Teile der Fermifläche verbindet. Im vorliegenden $t - U$ Modell beträgt die Länge des Nesting-Vektors bei $\delta = -0.35$ etwa \mathbf{Q}_{TL} , bei halber Füllung etwa $1.3 \mathbf{Q}_{TL}$ und bei $\delta = +0.35$ etwa $1.42 \mathbf{Q}_{TL}$. Im $t - t'' - U$ Modell beträgt die Länge des Nesting-Vektors bei $\delta = -0.35$ ebenfalls etwa \mathbf{Q}_{TL} , bei halber Füllung ist er verglichen mit dem $t - U$ Modell geringfügig auf ca. $1.2 \mathbf{Q}_{TL}$ reduziert.

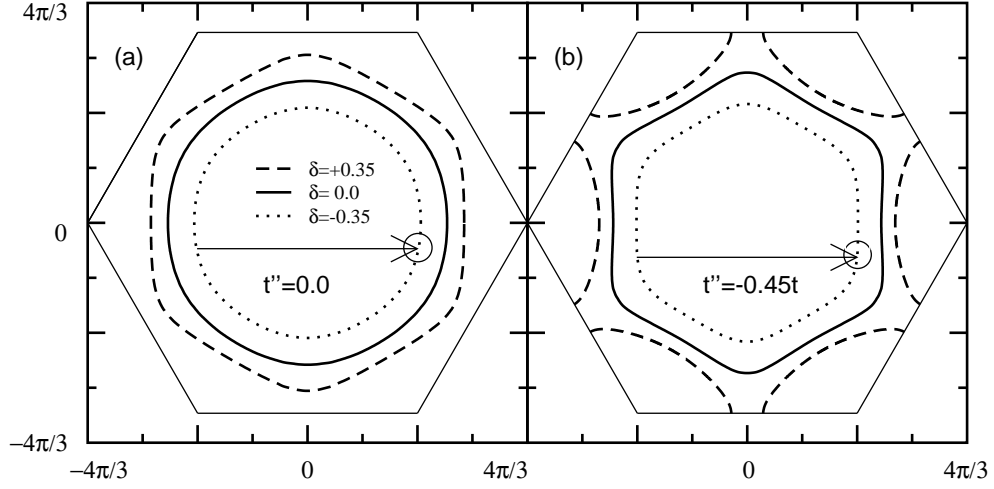


Abbildung 4.36: Fermiliniens des (a) $t - U$ und (b) $t - t'' - U$ Modells auf dem isotropen Dreiecksgitter für $T = 0.05t$, $U = 6t$, $t'' = -0.45t$ bei den Dotierungen $\delta = \pm 0.35$ und halber Füllung. Die Pfeile haben die Länge des kommensurablen Wellenvektors \mathbf{Q}_{TL} und die Kreise am rechten Ende bezeichnen jeweils die Halbwertsbreite des Paramagnon-Peaks bei $\delta = -0.35$.

4.7.2 Der Paramagnon-Peak

Analog zu Abschnitt 4.2 wird für das isotrope Dreiecksgitter der statische Spin-Strukturfaktor $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ untersucht. Wie zuvor ist der Beitrag von $T_{\rho\rho}$ vernachlässigbar klein.

Die Abbildungen 4.37 und 4.38 zeigen jeweils für das $t - U$ und $t - t'' - U$ Modell in (a) die Dotierungsabhängigkeit der Impulsraumstruktur von $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ bei einer starken Hubbard-Abstoßung von $U = 8t$.

Bei $\delta = +0.35$ liegt im $t - U$ Modell relativ schwache Streuung im Spin-Kanal mit inkommensurablen Impulsen hauptsächlich entlang der Richtungen $\Gamma - M$ und teilweise entlang $\Gamma - K$ vor. Der rückgefaltete Nesting-Vektor liegt nahe des M -Punkts. Die Amplitude dieser Struktur wächst kaum bei Erhöhung von $U = 4t$ auf $8t$. Mit Verringerung der Dotierung bis $\delta = -0.35$ wandert der Peak der Richtung $\Gamma - K$ zum kommensurablen Impuls am K -Punkt und wächst stark an. Der Peak der Richtung $\Gamma - M$ wird zu einer Schulter am M -Punkt reduziert, die aus dem Überlapp der Peaks an den K -Punkten resultiert. Bei $\delta = -0.35$ und $U = 8t$ ist $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ bei K gegenüber dem Γ -Punkt um einen Faktor ~ 25 überhöht.

Ein analoges Verhalten mit nahezu U -unabhängiger inkommensurabler Streuung bei $\delta = +0.35$ und Ausbildung eines kommensurablen Paramagnon-

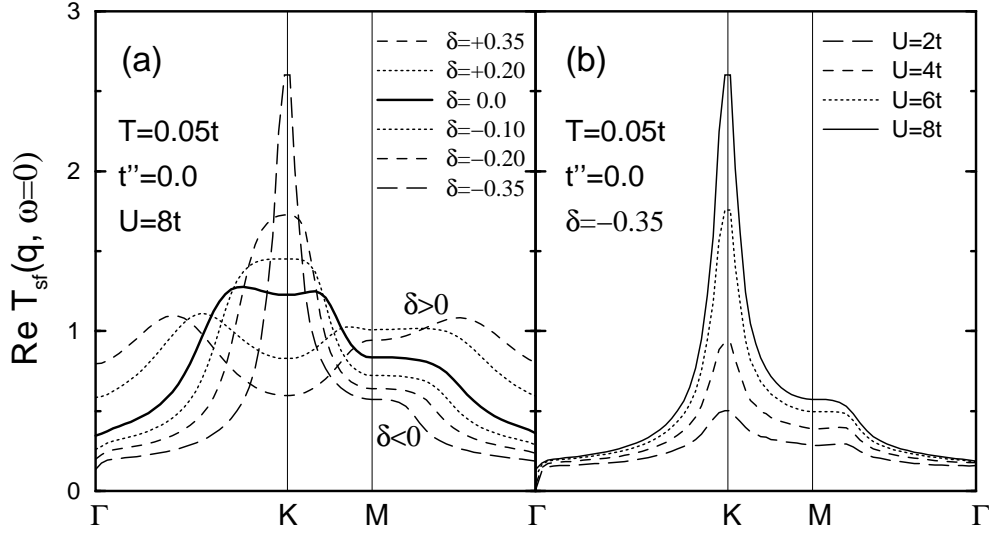


Abbildung 4.37: Impulsabhängigkeit des statischen Spin-Strukturfaktors $\text{Re } T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ bei (a) Variation der Dotierung von $\delta = +0.35$ bis $\delta = -0.35$ und (b) in Abhängigkeit von der Hubbard-Abstoßung U . Es werden Ergebnisse des $t - U$ Modells bei $T = 0.05t$ dargestellt.

Peaks bei $\delta = -0.35$ wird auch im $t - t'' - U$ Modell gefunden. Hier ist bei $\delta = +0.35$ die Amplitude von $\text{Re } T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ nochmals verringert, die Überhöhung bei $\delta = -0.35$ beträgt ~ 28 .

Die Abbildungen 4.37(b) und 4.38(b) zeigen, daß in beiden Modellen der Paramagnon-Peak erst oberhalb einer Hubbard-Abstoßung von $U = 4t$ stark anwächst. Für kleine und mittlere U ist der kommensurable Peak nur schwach ausgeprägt.

Wie schon im Beispiel des anisotropen Dreieckgitters mit $t' = 0.7t$, $\delta = +0.1$ bildet sich auch hier ein scharfer Paramagnon-Peak bei Impulsen, bei denen die Fermifläche niederenergetische Streuung mit der Periodizität des Gitters zuläßt. Im obigen Beispiel ist die Koordinationszahl der Verbindung von Teilen der Fermifläche mit kommensurablen Impulsen zwei (nur $\pm \mathbf{Q}_{SQL1}$, nicht \mathbf{Q}_{SQL2}), im isotropen Dreieckgitter drei. Dies erklärt den hier schärfsten Paramagnon-Peak aller untersuchten Systeme.

In Abb. 4.39 wird die Spinfluktationsfrequenz ω_{sf} der beiden Modelle verglichen. Im $t - t'' - U$ Modell fällt sie bei $U = 8t$ bis unter die Temperatur. Das System mit $t' = 0.7t$, $\delta = +0.1$ weist diese Eigenschaft bei \mathbf{Q}_{SQL} auf, das vorliegende mit $t' = t$, $\delta = -0.35$ bei \mathbf{Q}_{TL} . Die Berücksichtigung von t'' im isotropen Dreieckgitter verstärkt die Spinfluktationen soweit, daß anhand

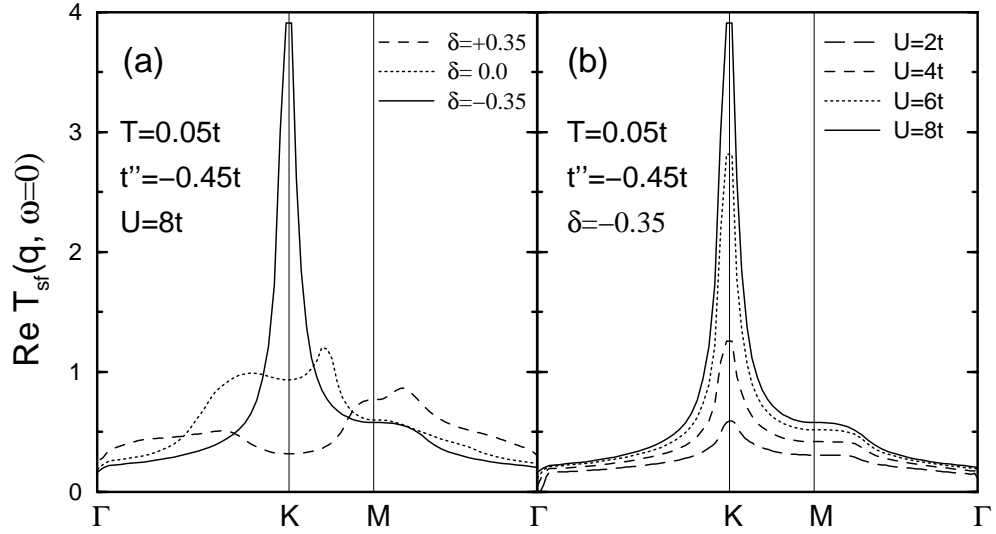


Abbildung 4.38: Impulsabhängigkeit des statischen Spin-Strukturfaktors $\text{Re } T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ bei (a) Variation der Dotierung von $\delta = +0.35$ bis $\delta = -0.35$ und (b) in Abhängigkeit von der Hubbard-Abstoßung U . Es werden Ergebnisse des $t - t'' - U$ Modells mit $t'' = -0.45t$ bei $T = 0.05t$ dargestellt. Bild (b) zeigt die U -Abhängigkeit für die für $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ relevante Dotierung $\delta = -0.35$ im Loch-Bild.

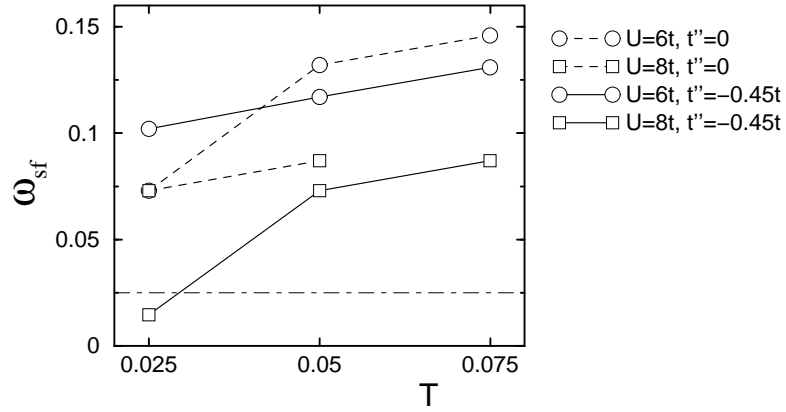


Abbildung 4.39: Temperaturabhängigkeit der Spinfluktationsfrequenz ω_{sf} am K-Punkt der BZ im $t-U$ und $t-t''-U$ Modell des isotropen Dreieckgitters bei $\delta = -0.35$. Im $t-t''-U$ Modell fällt ω_{sf} bei $U = 8t$ unter die Temperatur $T = 0.025t$, was mit der waagerechten Hilfslinie bei $\omega_{sf} = 0.025t$ dargestellt wird.

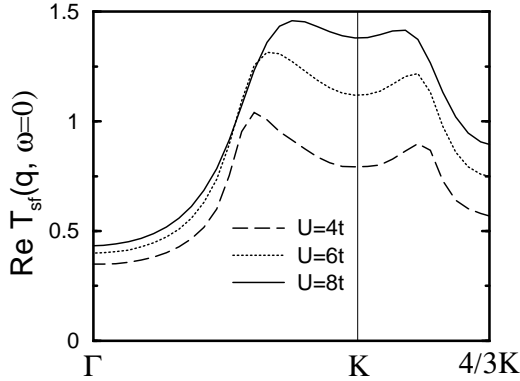


Abbildung 4.40: Inkommensurabilität von $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ in Abhängigkeit von der Hubbard-Wechselwirkung im $t - U$ Modell bei $\delta = 0$, $T = 0.05t$. Mit wachsendem U ist das Zusammenfließen der Doppelpeakstruktur um den K -Punkt zu erkennen.

des Kriteriums $\omega_{sf} < T$ bei Variation der Parameter t' und δ der Übergang zu einem stark korrelierten System mit der Topologie des Dreieckgitters festgestellt werden kann. Beiden Systemen ist gemein, daß $\omega_{sf} < T$ bei starker Hubbard-Abstoßung $U \geq 8t$ auftritt.

Die hier und in Abschnitt 4.2 gefundenen Ergebnisse zur dotierungsabhängigen Inkommensurabilität der Spinfluktuationen sind denen von Liang und Feng [138] gegenüberzustellen. Liang und Feng haben die dotierungsabhängige Inkommensurabilität des dynamischen Spin-Strukturfaktors im $t - J$ Modell auf dem isotropen Dreieckgitter untersucht. Bei halber Füllung ist dieser kommensurabel, bei Dotierung bis zu $\delta = +0.15$ ergibt sich eine Struktur von sechs inkommensurablen Peaks um \mathbf{Q}_{TL} ¹¹, deren Verschiebung zu \mathbf{Q}_{TL} ab $\delta = +0.1$ kaum ansteigt. Dieser scheinbare Widerspruch zu den hier gefundenen Resultaten kann durch die Betrachtung der Abhängigkeit der inkommensurablen Peak-Position von der Hubbard-Wechselwirkung in Abb. 4.40 aufgelöst werden. Das $t - J$ Modell betrachtet den Fall starker Kopplung $U \gg t$, während die FLEX-Näherung ein Ansatz schwacher Kopplung darstellt. In Abb. 4.40 kann mit wachsendem U ein Zusammenfließen der Doppelpeakstruktur um den K -Punkt beobachtet werden. Bei einer über dieses Modell hinausgehenden Extrapolation zu $U \gg t$ ist ein kommensurabler Spin-Strukturfaktor möglich. Bemerkenswerterweise tritt eine derartige Verschiebung des Paramagnons am kommensurablen Impuls für $\delta = -0.35$ gerade *nicht* auf. Die Position eines bei mittlerem U bereits kommensurablen Paramagnons erscheint konstant.

¹¹Dies entspricht einem inkommensurablen Peak in jedem an \mathbf{Q}_{TL} angrenzenden, irreduziblen Dreieck der hexagonalen BZ.

4.7.3 Die Selbstenergie

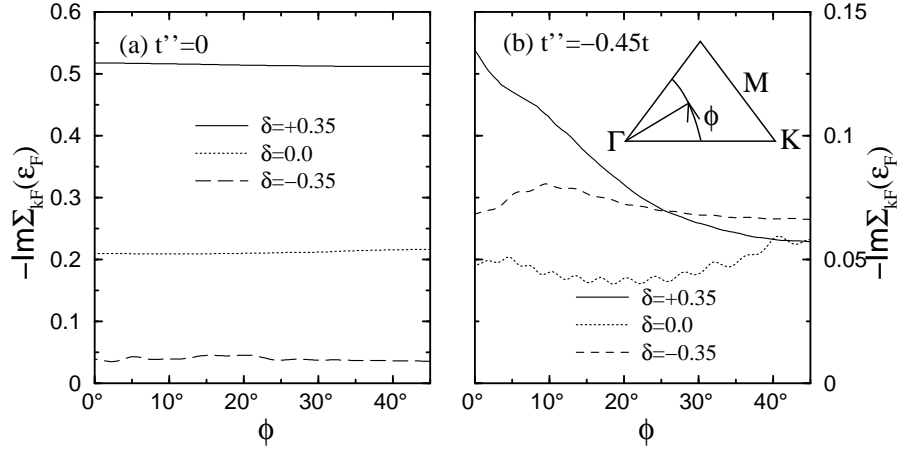


Abbildung 4.41: Dotierungsabhängigkeit des Imaginärteils der Selbstenergie auf dem oben rechts skizzierten Teil der Fermilinie des isotropen Dreieckgitters für $T = 0.05t$ und $U = 8t$. (a) $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\epsilon_F)$ des $t - U$ Modells, (b) $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\epsilon_F)$ des $t - t'' - U$ Modells.

Abb. 4.41 zeigt den Imaginärteil der Selbstenergie beider Modelle. Im Gegensatz zu den anisotropen Dreieckgittern (siehe Abb. 4.20 und 4.21) ist die Selbstenergie im $t - U$ Modell in guter Näherung isotrop. In Abschnitt 4.3 wurden die Größe des statischen Spin-Strukturfaktors und besonders die Zustandsdichte an der Fermifläche als die wesentlichen Einflußgrößen auf $\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\epsilon_F)$ identifiziert.

Die Abnahme der Zustandsdichte im $t-U$ Modell mit der Dotierung aufgrund des vergrößerten Abstands zum M -Punkt bewirkt die zu $\delta = -0.35$ geringer werdende Streurrate.

Im $t - t'' - U$ Modell liegt die Fermi-Energie im Dotierungsbereich zwischen $\delta = -0.35$ und $\delta = +0.35$ gerade in der nahezu konstanten Umgebung der unrenormierten Zustandsdichte von $\epsilon_{\mathbf{k}}^0 = -1t$ (vgl. Abb. 4.34(b)). Dies führt bei allen Dotierungen zu einer geringen Streurrate. Die Annäherung an den M -Punkt bei $\delta = +0.35$ bewirkt zusätzlich eine Anisotropie der Streurrate bei dieser Dotierung.

Die zusammen mit den Fermiflächen in Abb. 4.36 dargestellten Pfeile der Länge \mathbf{Q}_{TL} und die Halbwertsbreiten der Paramagnon-Peaks verdeutlichen die Nesting-Situation bei $\delta = -0.35$. In beiden Modellen können bei dieser Dotierung Teile der Fermifläche über $\mathbf{Q}_{TL1,2,3}$ mit den ihnen gegenüberlie-

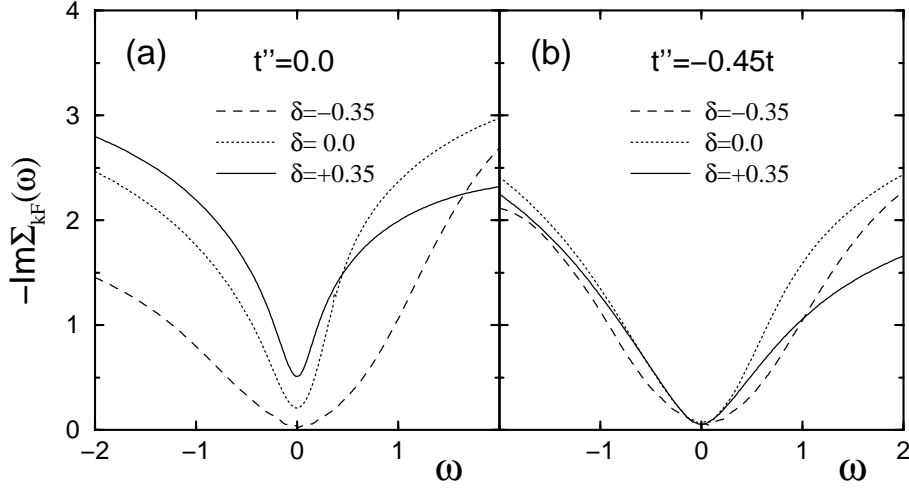


Abbildung 4.42: Frequenzabhängigkeit von $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\omega)$ an der Fermilinie in Richtung $\Gamma - K$ und in der Umgebung der Fermi-Energie für $T = 0.05t$, $U = 8t$ bei den Dotierungen $\delta = \pm 0.35$ und halber Füllung des (a) $t - U$ Modells und (b) $t - t'' - U$ Modells mit $t'' = -0.45t$ (\mathbf{k}_F in Einheiten von \mathbf{Q}_{TL} (a): $\delta = -0.35$: $33/64$; $\delta = 0.0$: $42/64$; $\delta = +0.35$: $45/64$, (b): $\delta = -0.35$: $33/64$; $\delta = 0.0$: $39/64$; $\delta = +0.35$: $42/64$).

genden Regionen verbunden werden. Im $t - U$ Modell sind diese Teile der Fermifläche allerdings nicht parallel. Hier ist eine Verbindung gegenüberliegender Regionen lediglich innerhalb der Halbwertsbreite des Paramagnon-Peaks möglich. Im $t - t'' - U$ Modell ist bei allen Dotierungen die hexagonale Form der Fermifläche stärker ausgeprägt. Hier sind bei $\delta \leq 0$ die Nesting-Eigenschaften, verglichen mit dem $t - U$ Modell, verbessert.

Abb. 4.42 zeigt die Frequenzabhängigkeit des Imaginärteils der Selbstenergie beider Modelle nahe der Fermilinie in Richtung $\Gamma - K$. Die bei einer normalen Fermiflüssigkeit erwartete quadratische Frequenzabhängigkeit in der Umgebung der Fermi-Energie wird in beiden Modellen und bei allen Dotierungen erfüllt. Im $t - U$ Modell ist bei $\delta = +0.35$ sowohl die Ein-Teilchen-Streureate an der Fermi-Energie als auch ihre Steigung in der Umgebung von ϵ_F deutlich größer als bei $\delta = -0.35$. Dieses Ergebnis bestätigt die mit einem Renormierungsgruppen-Ansatz für $U \leq 4t$ gefundene Tendenz zu starker Kopplung bei $\delta = +0.35$ [19]. Darüber hinaus beschränkt die Steigung der Streureate niederenergetische Streuung auf ein kleines Energiefenster um die Fermi-Energie. Die schwächere Frequenzabhängigkeit bei $\delta = -0.35$ erlaubt niederenergetische Streuung in einem weiteren Bereich um die Fermi-Energie.

Im $t - t'' - U$ Modell erniedrigt das Hüpfen auf übernächste Nachbarplätze t'' die Ein-Teilchen-Streurate an der Fermi-Energie für alle Dotierungen auf etwa den Wert des $t - U$ Modells bei $\delta = -0.35$. Auch die Steigungen der Streuraten sind nahezu identisch.

Die hier gefundenen Ergebnisse werden nun mit [19] verglichen. Mit einer Renormierungsgruppen-Methode, die ebenso wie die FLEX-Methode eine Approximation im Limes schwacher Kopplung darstellt, wird in einem loch-artigen Modell der Fluß zu starker Kopplung in einem weiten Dotierungsbereich untersucht. Für $\delta = +0.5$ wird eine Tendenz zu starker Kopplung aufgrund der rein lokalen Hubbard-Wechselwirkung festgestellt, für $\delta < 0$ bleibt diese aus. Die Ergebnisse stimmen qualitativ mit der hier beobachteten Dotierungsabhängigkeit der Selbstenergie überein. In [19] wird die Hubbard-Wechselwirkung auf $U \leq 4t$ begrenzt, so daß die hier ab $U \geq 6t$ gefundene Verstärkung der Spinfluktuationen mit kommensurablen Impulsen nicht beobachtet wird.

Kapitel 5

Die optische Leitfähigkeit

Ebenso wie bei den Kuprat-Supraleitern ist die dynamische optische Leitfähigkeit bei den organischen Verbindungen κ -(ET)₂X eine wichtige Methode zur Untersuchung von elementaren Anregungen und Korrelationseffekten. Experimentell wird sie gewonnen aus Messungen der frequenzabhängigen Reflexivität $R(\omega)$ im infraroten Wellenlängenbereich. Zusammen mit der Phasenverschiebung ist $R(\omega)$ verbunden mit der dielektrischen Suszeptibilität $\epsilon(\omega)$ und diese wiederum mit der optischen Leitfähigkeit $\sigma(\omega)$.

In den folgenden Abschnitten wird die Herleitung der Kubo-Formel für den Strom Response auf ein äußeres elektrisches Feld skizziert, eine Vertexkorrektur motiviert und implementiert sowie Ergebnisse zur Strom-Strom-Korrelation und optischen Leitfähigkeit mit und ohne Vertexkorrektur in einer Parameterstudie diskutiert.

5.1 Strom Response

Der Weg zur dynamischen optischen Leitfähigkeit führt über den linearen Strom Response auf das Vektorpotential eines zeitabhängigen elektrischen Feldes $\mathbf{E}(\mathbf{q}, t)$ (siehe z.B. [139]). Die Leitfähigkeit $\sigma_{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega)$ ist definiert über den vom gesamten Feld induzierten Strom

$$J_{\alpha}(\mathbf{q}, t) = \sum_{\beta} \sigma_{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega) E_{\beta}(\mathbf{q}, t) . \quad (5.1)$$

Die Indizes α und β bezeichnen die Raumrichtungen x , y bzw. z . Der Hamilton-Operator H des wechselwirkenden Systems wird zerlegt in den ungestörten Teil H_0 und den Hamilton-Operator

$$H_1 = -\frac{1}{c} \int d^3r \mathbf{j}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t), \quad (5.2)$$

der die Wechselwirkung mit dem Vektorpotential $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ beschreibt.

Für ein monofrequentes elektrisches Feld gilt $\frac{1}{c}A_\alpha(\mathbf{r}, t) = -\frac{i}{\omega}E_\alpha(\mathbf{r}, t)$. Im folgenden wird die Coulomb-Eichung $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$ sowie ein transversales elektrisches Feld und Vektorpotential verwendet.

Die Impulsraumdarstellung des Stromoperators, geschrieben mit Erzeuger- und Vernichtoperatoren für Eigenzustände des ungestörten Systems H_0 , lautet

$$\mathbf{j}(\mathbf{q}) = \sum_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger a_{\mathbf{k}} \left(\mathbf{k} + \frac{1}{2}\mathbf{q} \right). \quad (5.3)$$

Die meßbare induzierte Stromdichte J_α ist proportional zum Erwartungswert der Teilchengeschwindigkeiten im System. Sie wird zunächst als Summe über die einzelnen Geschwindigkeiten \mathbf{v}_i , dividiert durch das Volumen V , geschrieben

$$J_\alpha(\mathbf{r}, t) = \frac{e}{V} \sum_i \langle v_{i,\alpha} \rangle. \quad (5.4)$$

Für die quantisierte Geschwindigkeit des i ten Teilchens gilt $\mathbf{v}_i = \frac{1}{m} [\mathbf{p}_i - \frac{e}{c}\mathbf{A}(\mathbf{r}_i)]$. Weiterhin ist der Impulsoperator über $\mathbf{j} = \frac{e}{m}\mathbf{p}$ mit dem Stromoperator verbunden.

Mit der Ersetzung der Summe über die Teilchen durch die Teilchendichte $1/V \sum_i \rightarrow n$ und den obigen Beziehungen erhält man die Zerlegung der induzierten Stromdichte in einen diamagnetischen (frequenzunabhängigen) und einen paramagnetischen (frequenzabhängigen) Teil

$$J_\alpha(\mathbf{r}, t) = i \frac{ne^2}{m\omega} E_\alpha(\mathbf{r}, t) + \langle j_\alpha(\mathbf{r}, t) \rangle. \quad (5.5)$$

Der erste Term auf der rechten Seite von Gl. (5.5) ist proportional zum elektrischen Feld. Nun wird mit der Ableitung der Kubo-Formel gezeigt, daß auch der zweite Term die Eigenschaft $\langle j_\alpha(\mathbf{r}, t) \rangle \propto E_\alpha(\mathbf{r}, t)$ aufweist.

Für endliche Temperaturen beschreibt $\langle j_\alpha(\mathbf{r}, t) \rangle = \text{Tr}\{\rho(t)j_\alpha\}$ den thermodynamischen Erwartungswert mit der zeitabhängigen Dichtematrix $\rho(t)$ des wechselwirkenden Systems $H_0 + H_1$. Setzt man die Lösung der in H_1 linearisierten Bewegungsgleichung für $\rho(t)$ in die Spur ein, ergibt sich $\langle j_\alpha(\mathbf{r}, t) \rangle = \text{Tr}\{\rho_0[j_\alpha(\mathbf{r}, t), H_1(t')]\}$ mit der zeitunabhängigen Dichtematrix ρ_0 von H_0 . Der Erwartungswert des Stromoperators hat also die Form

$$\langle j_\alpha(\mathbf{r}, t) \rangle = -i \int_{-\infty}^t dt' \langle [j_\alpha(\mathbf{r}, t), H_1(t')] \rangle . \quad (5.6)$$

Mit H_1 aus Gl. (5.2) wird Gl. (5.6) zu

$$\langle j_\alpha(\mathbf{r}, t) \rangle = \frac{1}{\omega} E_\beta(\mathbf{r}, t) e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}} - i \int_{-\infty}^t dt' \langle [j_\alpha(\mathbf{r}, t), j_\beta(\mathbf{q}, t')] \rangle , \quad (5.7)$$

in der der induzierte Strom proportional zum elektrischen Feld ist. Eine Mittelung über den Ort \mathbf{r} eliminiert die atomaren Fluktuationen und mit Gl. (5.5) und Gl. (5.7) ergibt sich die gesamte dynamische Leitfähigkeit zu

$$\sigma_{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{i}{\omega} \left(\frac{ne^2}{m} \delta_{\alpha\beta} + \chi_{jj,\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega) \right) \quad (5.8)$$

mit der Korrelationsfunktion des Stromoperators¹

$$\chi_{jj,\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega) = -\frac{i}{V} \int_{-\infty}^{\infty} dt \Theta(t) e^{i\omega t} \langle [j_\alpha^\dagger(\mathbf{q}, t), j_\beta(\mathbf{q}, 0)] \rangle . \quad (5.9)$$

Die Wellenlänge des verwendeten infraroten Lichts ist groß gegenüber der Gitterkonstante. Daher ist der von den Photonen übertragene Impuls vernachlässigbar und die folgende Betrachtung bei $\mathbf{q} = 0$ angemessen.

Mit Gl. (5.3) hat Gl. (5.9) im Matsubara-Formalismus die Form

$$\chi_{jj,\alpha\beta}(\mathbf{q} = 0, i\nu_m) = -\frac{1}{V} \int_0^\beta d\tau e^{i\nu_m \tau} \langle T_\tau j_\alpha^\dagger(\mathbf{q} = 0, \tau), j_\beta(\mathbf{q} = 0, 0) \rangle . \quad (5.10)$$

Die Strom-Suszeptibilität Gl. (5.10) wird nun mit einer diagrammatischen Näherung berechnet. Das in Abb. 5.2(a) dargestellte Feynman-Diagramm mit den FLEX-renormierten Greensfunktionen und die entsprechende Gleichung

$$\begin{aligned} \chi_{jj,\alpha\beta}(\mathbf{q} = 0, i\nu_m) &= \frac{2e^2}{m^2 V} \sum_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k},\alpha}^0 \int_0^\beta d\tau e^{i\nu_m \tau} G_{\mathbf{k}}(\tau) G_{\mathbf{k}}(-\tau) \gamma_{\mathbf{k},\beta}^0 \\ &= \frac{2e^2}{m^2 V} \frac{1}{\beta} \sum_{\mathbf{k},n} \gamma_{\mathbf{k},\alpha}^0 G_{\mathbf{k}}(i\omega_n + i\nu_m) G_{\mathbf{k}}(i\omega_n) \gamma_{\mathbf{k},\beta}^0 \end{aligned} \quad (5.11)$$

gehen über den ersten Schritt einer Teilchen-Loch-Blase mit wechselwirkungsfreien Greensfunktionen hinaus, indem der Imaginärteil der Selbstenergie die Dämpfung der Teilchenbewegung aufgrund der Streuung an Spin- und Dichtefluktuationen berücksichtigt. Die Teilchen-Loch-Blase wird durch die

¹Strom-Strom-Suszeptibilität, im folgenden kurz Strom-Suszeptibilität genannt.

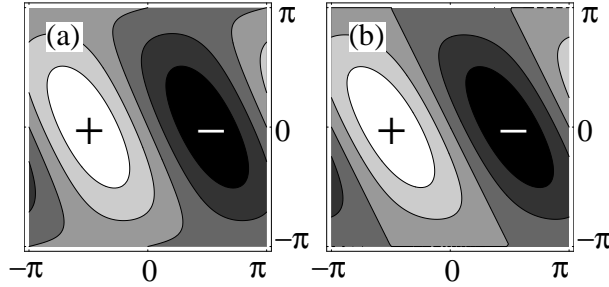


Abbildung 5.1: Die p -symmetrische Impulsraumstruktur des Strom-Vertex $\gamma_{\mathbf{k}}^0$ für (a) $t' = 0.8t$ und (b) $t' = t$.

unrenormierten Strom-Vertizes $\gamma_{\mathbf{k},\alpha}^0 = \frac{\partial \epsilon_{\mathbf{k}}^0}{\partial k_{\alpha}}$ abgeschlossen.

Die Impulsraum-Symmetrie der Greensfunktion und die in Abb. 5.1 gezeigte p -Symmetrie der Strom-Vertizes $\gamma_{\mathbf{k},\alpha}^0$ führt bei der Integration über die gesamte BZ in Gl. (5.11) dazu, daß $\chi_{jj,xx}(\mathbf{q} = 0, i\nu_m) = \chi_{jj,yy}(\mathbf{q} = 0, i\nu_m)$ ist. Im folgenden wird ausschließlich die Strom-Suszeptibilität $\chi_{jj,xx}(\mathbf{q} = 0, i\nu_m)$ betrachtet und der Index xx kann entfallen.²

Die Strom-Suszeptibilität $\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, i\nu_m)$ unterscheidet sich von der Teilchen-Loch-Blase $\chi_{\mathbf{q}}^0(i\nu_m)$ der FLEX SK-Gleichungen aus Gl. (3.4) nur durch die Hinzunahme der impulsabhängigen Strom-Vertizes $\gamma_{\mathbf{k}}^0$. Hierdurch ergeben sich die in Abb. 5.1 dargestellten Gewichtungen der Beiträge verschiedener Regionen der BZ. Die Behandlung der Frequenzsummation kann hier analog zu Gl. (3.4) auf der in Anhang A.1 beschriebenen γ -Contour durchgeführt werden.

Der Realteil der optischen Leitfähigkeit ergibt sich nach Gl. (5.8) aus der Strom-Suszeptibilität zu $\sigma(\omega) = -1/\omega \operatorname{Im} \chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$.

5.2 Die Vertexkorrektur

Die Strom-Suszeptibilität ist eine Zwei-Teilchen-Größe. Die FLEX-Näherung ist so konstruiert, daß die berücksichtigten Beiträge zur Selbstenergie Erhaltungssätze für Ein-Teilchen-Größen erfüllen.

Für Zwei-Teilchen-Erhaltungsgrößen sind Diagramme höherer Ordnung in der Wechselwirkung notwendig. Diese können in Gl. (5.11) mit einer Vertexkorrektur berücksichtigt werden. In diesem Kapitel wird u.a. der Effekt der Vertexkorrektur auf die Strom-Suszeptibilität untersucht.

Im allgemeinen ergibt sich der renormierte Vertex Γ im Rahmen des Schemas von Kadanoff und Baym [78,79] als Funktionalableitung der Selbstenergie nach der renormierten Greensfunktion $\Gamma = \frac{\delta \Sigma}{\delta G}$. Die vollständige Berechnung dieser Vertexkorrektur ist aufgrund der Komplexität der Gleichungen

²Im folgenden wird $\gamma_{\mathbf{k},\alpha}^0$ mit $\alpha = x$ kurz als $\gamma_{\mathbf{k}}^0$ bezeichnet.

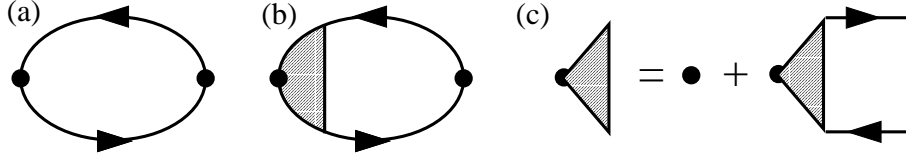


Abbildung 5.2: Strom-Suszeptibilität mit und ohne Vertexkorrektur. Durchgezogene Linien bezeichnen die FLEX-renormierten Greensfunktionen $G_{\mathbf{k}}(i\omega_n)$ aus Gl. (3.6), gestrichelte Linien die effektive Wechselwirkung $V_{\mathbf{q}}(i\nu_m)$ aus Gl. (3.5), Punkte die unrenormierten Strom-Vertizes $\gamma_{\mathbf{k}}^0$ und schraffierte Flächen die genäherte Vertexkorrektur $\Gamma_{\mathbf{k}}(i\omega_n, i\omega_n + i\nu_m)$ aus Gl. (5.12). (a) $\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, i\nu_m)$ ohne Vertexkorrektur, (b) $\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, i\nu_m)$ mit Vertexkorrektur durch (c) Leiterdiagramme.

nicht möglich. Die Struktur der FLEX SK-Gleichungen ermöglicht jedoch die Angabe eines genäherten Vertex, der im Fall der Dichte-Suszeptibilität die Teilchenzahl erhält.

Die Ähnlichkeit der Strom-Suszeptibilität zur Dichte-Suszeptibilität $\chi_{\rho\rho}(\omega)$, die ohne Vertexkorrektur der Teilchen-Loch-Blase aus Gl. (3.4) entspricht, legt den in Abb. 5.2(c) skizzierten Einschub von Leiterdiagrammen zur Vertexkorrektur nahe.

Für $\mathbf{q} = 0$ verlangt die Teilchenzahlerhaltung, daß $\chi_{\rho\rho}(\omega) \propto \delta(\omega)$ ist, also $\text{Im}\chi_{\rho\rho}(\omega)$ bei allen Frequenzen verschwindet. In Abb. 5.3 weist $\text{Im}\chi_{\rho\rho}(\omega)$ ohne Vertexkorrektur bei $U > 0$ ein erhebliches Gewicht bei endlichen Frequenzen auf. Diese Verletzung der Teilchenzahlerhaltung kann mit der folgenden genäherten Vertexkorrektur behoben werden.

Um die Analogie der Vertexkorrektur für den Dichte-Dichte- und Strom-Strom-Fall zu verdeutlichen, wird sie zunächst allgemein aufgeschrieben

$$\Gamma_{\mathbf{k}}(i\omega_n, i\omega_n + i\nu_m) = \gamma_{\mathbf{k}}^0 + \sum_{\mathbf{k}', n'} V_{\mathbf{k}' - \mathbf{k}}(i\omega_{n'} - i\omega_n) G_{\mathbf{k}'}(i\omega_{n'}) \times G_{\mathbf{k}'}(i\omega_{n'} + i\nu_m) \Gamma_{\mathbf{k}'}(i\omega_{n'}, i\omega_{n'} + i\nu_m) \quad (5.12)$$

$$\chi^{vc}(\mathbf{q} = 0, i\nu_m) = -\frac{T}{N} \sum_{\mathbf{k}, n} \gamma_{\mathbf{k}}^0 G_{\mathbf{k}}(i\omega_n + i\nu_m) G_{\mathbf{k}}(i\omega_n) \Gamma_{\mathbf{k}}(i\omega_n, i\omega_n + i\nu_m) \quad (5.13)$$

und dann für die beiden Fälle spezialisiert. Sie unterscheiden sich ausschließlich in den unrenormierten Vertizes $\gamma_{\mathbf{k}}^0$. Die unrenormierten Vertizes haben die Form

$$\begin{aligned}
\text{Dichte} & : \gamma_{\mathbf{k}}^0 = \gamma_{\rho}^0 = 1 \\
\text{Strom} & : \gamma_{\mathbf{k}}^0 = \gamma_{j,\alpha}^0 = \frac{\partial \epsilon_{\mathbf{k}}^0}{\partial k_{\alpha}} .
\end{aligned} \tag{5.14}$$

So ist in die Dichte-Suszeptibilität $\chi_{\rho\rho}(\mathbf{q} = 0, i\nu_m)$ in Gl. (5.13) und den Vertexeinschub aus Gl. (5.12) jeweils für $\gamma_{\mathbf{k}}^0$ die Identität einzusetzen. Die Strom-Suszeptibilität $\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, i\nu_m)$ erhält man mit der Ersetzung von $\gamma_{\mathbf{k}}^0$ durch $\gamma_{j,\alpha}^0$.

Der so definierte Vertex erfüllt die Ward-Identität

$$i\omega_n \Gamma_{\mathbf{k}}(i\nu_m + i\omega_n, i\nu_m) = G_{\mathbf{k}}^{-1}(i\omega_n + i\nu_m) - G_{\mathbf{k}}^{-1}(i\omega_m) , \tag{5.15}$$

die sich über die Kontinuitätsgleichung aus der Teilchenzahlerhaltung ergibt.

Die den Gleichungen (5.13) und (5.12) entsprechenden Feynman-Diagramme sind in Abb. 5.2 (b) und (c) dargestellt. Im Gegensatz zu den Leiterdiagrammen zur Bestimmung von T_{sf} in Gl. (3.5) verbindet hier die nichtlokale Wechselwirkung $V_{\mathbf{q}}(i\nu_m)$ die Greensfunktionen.

Das an einem Vertex erzeugte Teilchen-Loch-Paar kann bis zu seiner Vernichtung am gegenüberliegenden Vertex also (mehrfach) über das Potential der Spin- und Dichtefluktuationen wechselwirken.

In Abb. 5.3 wird $\text{Im}\chi_{\rho\rho}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ mit und ohne renormiertem Vertex verglichen. Ohne Berücksichtigung der Vertexkorrektur hat $\text{Im}\chi_{\rho\rho}$ ein erhebliches frequenzabhängiges Gewicht. Bei Hinzunahme der Vertexkorrektur wird $\text{Im}\chi_{\rho\rho}$ bis auf 10^{-5} unterdrückt, womit im Rahmen der numerischen Genauigkeit die Teilchenzahlerhaltung erfüllt ist.

Für die Strom-Suszeptibilität existiert kein der Teilchenzahlerhaltung entsprechender Erhaltungssatz. Die Ähnlichkeit zur Dichte-Suszeptibilität legt allerdings nahe, daß die Vertexkorrektur mit Leiterdiagrammen auch hier die wesentlichen Beiträge zu dieser Zwei-Teilchen-Größe umfaßt.

Dies wird unterstützt durch die Arbeiten [140, 141] zum Hall-Koeffizienten. Darin hat sich gezeigt, daß von den drei irreduziblen Vierpunkt-Vertizes nur die Leiterdiagramme einen quantitativ relevanten Beitrag liefern.

Zur Berechnung der Vertexkorrektur wird die γ -Contour verlassen. Die renormierte Greensfunktion und die zugehörige effektive Wechselwirkung werden analytisch auf Matsubara-Frequenzen fortgesetzt. Für jede Matsubara-Frequenz $i\nu_m$ wird Gl. (5.12) iterativ gelöst. Mit diesem frequenzabhängigen Vertex wird die vertexkorrigierte Strom-Suszeptibilität Gl. (5.13) am Frequenzpunkt $i\nu_m$ berechnet. Die vollständige Strom-Suszeptibilität der Matsubara-

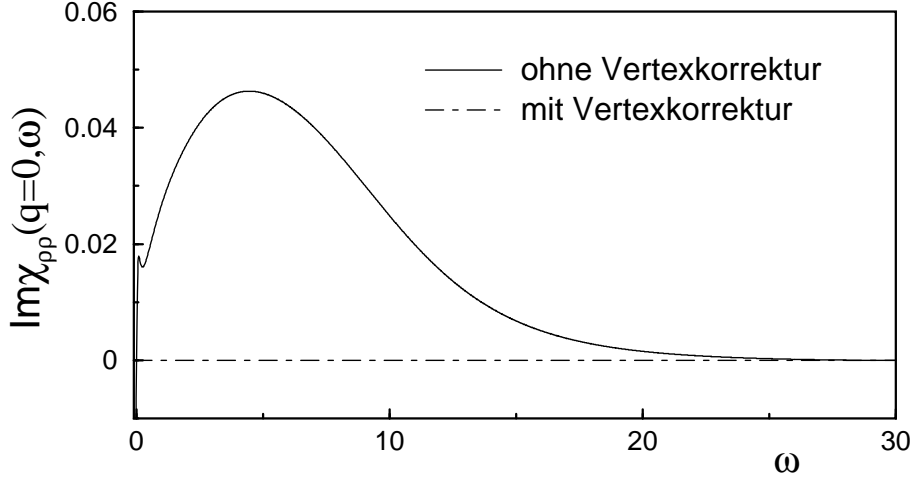


Abbildung 5.3: Imaginärteil der Dichte-Suszeptibilität mit und ohne Vertexkorrektur. Das Verschwinden des frequenzabhängigen Gewichts bei Berücksichtigung von Leiterdiagrammen zur Vertexkorrektur entspricht der Teilchenzahlerhaltung.

Frequenzen $i\nu_0$ bis $i\nu_{m_{\max}}$ wird abschließend analytisch auf die reelle Achse fortgesetzt.³ Eine Diskussion der Stabilität der analytischen Fortsetzungen findet sich in Anhang A.3.

5.3 Ergebnisse

Die Diskussion der Ergebnisse zur Strom-Suszeptibilität und der dynamischen Leitfähigkeit wird begonnen mit der Temperaturabhängigkeit von $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ ohne Vertexkorrektur, die in Abb. 5.4 dargestellt ist.

Bei allen Temperaturen zeigt $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ ein breites Maximum bei $\omega \sim 5t$. Die Höhe dieses Peaks wächst mit der Hubbard-Abstoßung U , die Parameter t' , δ und T haben nur geringfügigen Einfluß auf dessen Höhe, Breite und Position. Mit steigender Temperatur entwickelt sich eine zweite Energieskala bei kleinen Frequenzen. Ein Peak wächst zunächst bei $\omega = 0$ mit T . Ab $T = 0.05t$ verschiebt sich dieser zu endlichen Frequenzen und wird für hohe Temperaturen zu einer Schulter des breiten Maximums. Sobald sich das Niederfrequenz-Maximum von $\omega = 0$ entfernt, wird ein Drude-artiges

³In der Vertexgleichung Gl. (5.12) werden $n = 512$ fermionische Matsubara-Frequenzen $i\omega_n$ berücksichtigt. Da die Strom-Suszeptibilität Gl. (5.13) schnell konvergiert, ist die Berechnung von $m_{\max} = 128$ frequenzabhängigen Vertizes hinreichend.

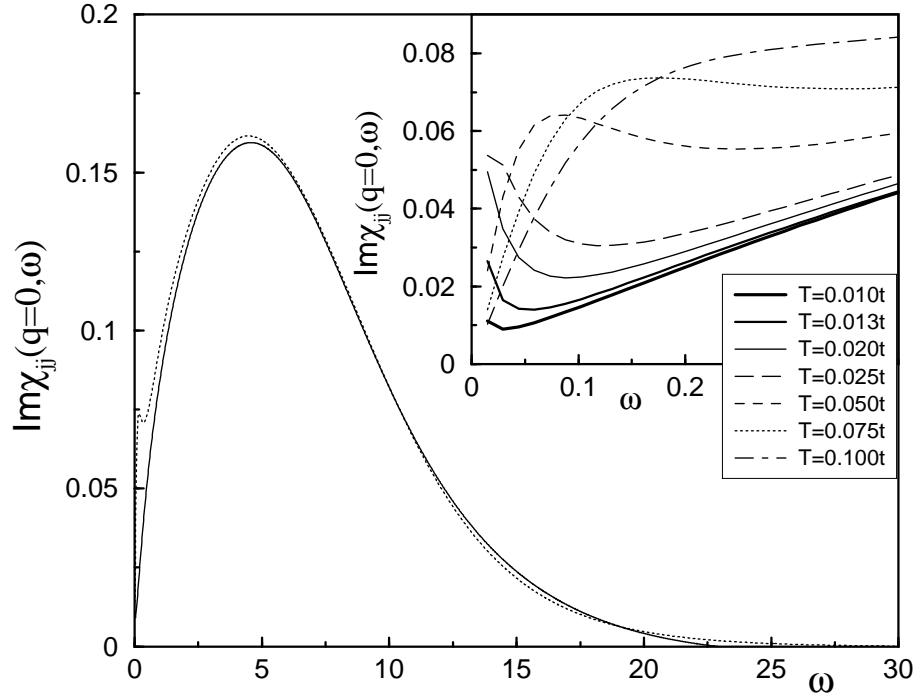


Abbildung 5.4: Temperaturabhängigkeit von $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ ohne Vertexkorrektur bei $U = 6t$, $t' = 0.8t$ und halber Füllung. Im Inset ist der Niederfrequenzbereich dargestellt.

Verhalten in der optischen Leitfähigkeit sichtbar. In $\sigma(\omega)$ entsteht ein Peak bei $\omega = 0$, dessen Amplitude bei wachsender Halbwertsbreite mit T abfällt. Der breite Peak in der Strom-Suszeptibilität ist in $\sigma(\omega)$ zu einem konturlosen Hintergrund bei hohen Frequenzen unterdrückt.

Das qualitative Verhalten der Strom-Suszeptibilität wiederholt sich bei allen Parametersätzen. Im folgenden wird das niederfrequente Verhalten von $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ und $\sigma(\omega)$ untersucht.

5.3.1 Effekt der Vertexkorrektur

Abb. 5.5 zeigt anhand zweier Parametersätze die Auswirkungen der Vertexkorrektur aus Abschnitt 5.2 auf $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ und $\sigma(\omega)$. Bei beiden Parametersätzen reduziert sich $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ geringfügig und das Niederfrequenz-Maximum verschiebt sich in Richtung $\omega = 0$. Dieses Verhalten wird bei allen hier untersuchten Parametersätzen beobachtet. Die Entfernung des Niederfrequenz-Peaks in $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ vom Ursprung ist

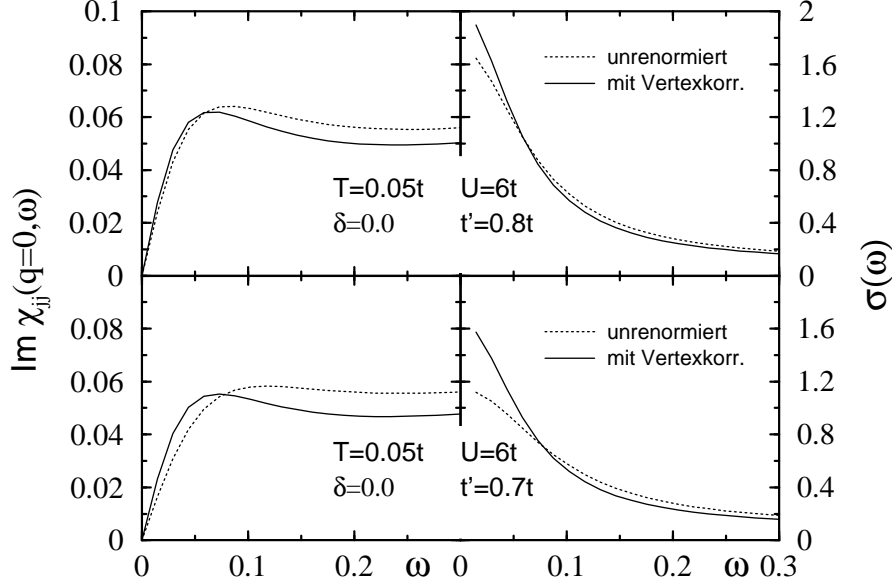


Abbildung 5.5: Vergleich von $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ und der dynamischen Leitfähigkeit $\sigma(\omega)$ mit und ohne Vertexkorrektur für zwei Parametersätze.

wesentlich für die Form des Drude-artigen Peaks in der optischen Leitfähigkeit. Seine Verschiebung zu kleinen Frequenzen bewirkt einen verstärkten Drude-Response in $\sigma(\omega)$. Die Änderungen in beiden Größen bei Hinzunahme der Vertexkorrektur sind quantitativ klein. Neue qualitative Eigenschaften treten hierbei nicht auf. Eine quantitative Analyse der Vertexkorrektur folgt in Abschnitt 5.3.3. Der Grund für die geringe Renormierung durch die Vertexkorrektur liegt in der p -Symmetrie des Strom-Vertex $\gamma_{\mathbf{k}}^0$. Der Beitrag der Vertexkorrektur am Impuls \mathbf{k} wird in der Strom-Suszeptibilität nahezu vollständig kompensiert durch den bei $-\mathbf{k}$.

Die geringe Änderung der Ergebnisse bei Berücksichtigung der Vertexkorrektur zeigt, daß zur Beschreibung des optischen Responses in dem vorliegenden Modell das Ein-Teilchen-Bild angemessen ist.

5.3.2 Eine Parameterstudie

Abb. 5.6 zeigt eine Parameterstudie zum optischen Response unter Berücksichtigung der Vertexkorrektur. Es sind Ergebnisse für $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ und $\sigma(\omega)$ bei Variation (a) der Hubbard-Abstoßung U , (b) der Abweichung δ von halber Füllung und (c) des diagonalen Hüpfmatrixelements t' dargestellt.

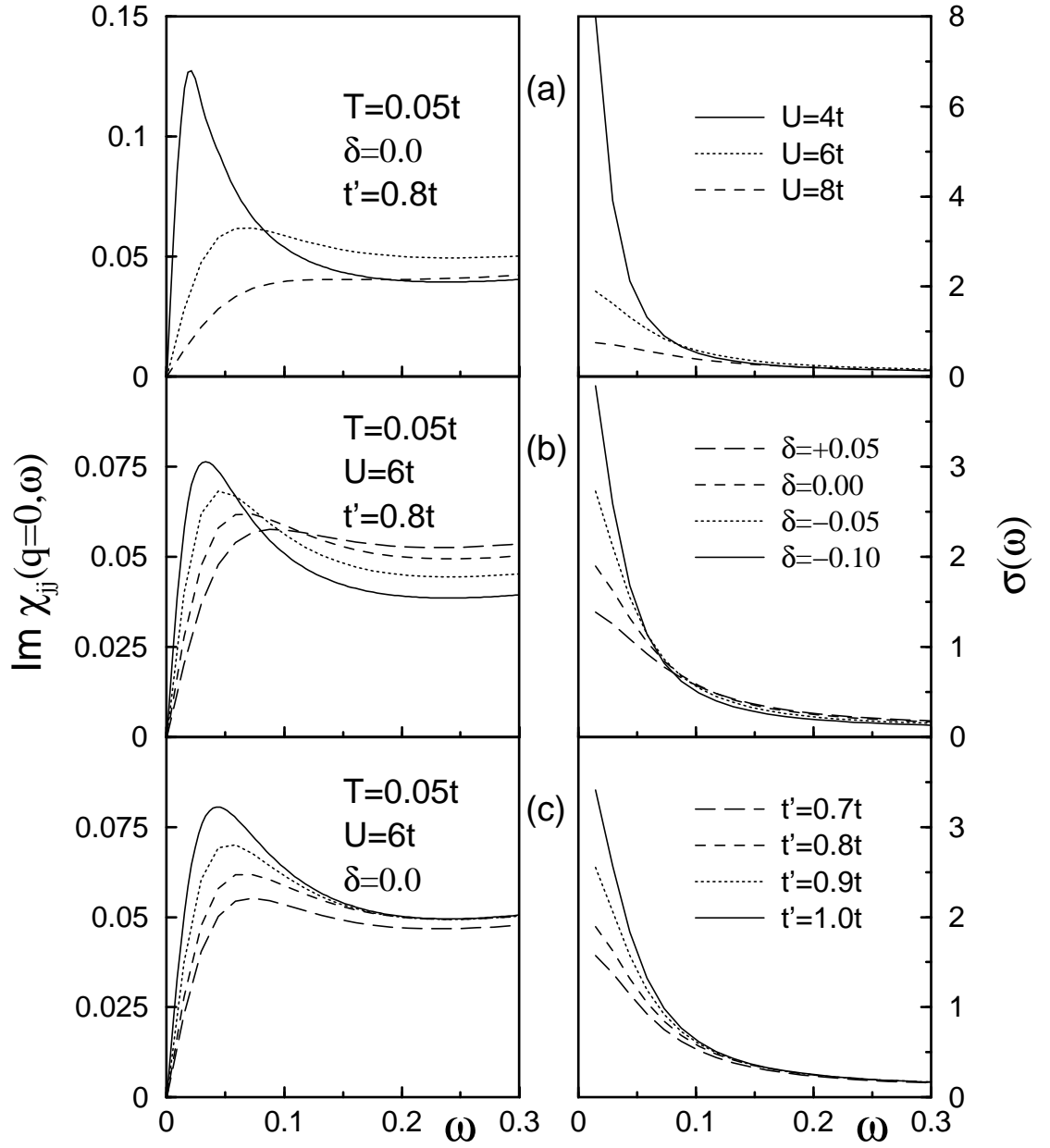


Abbildung 5.6: Niederfrequenzbereiche von $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ und $\sigma(\omega)$ mit Vertexkorrektur für Variation der (a) Hubbard-Abstoßung U , der (b) Dotierung δ und des (c) diagonalen Hüpfmatrixelements t' .

Abb. 5.6(a) zeigt den starken Abfall der Strom-Suszeptibilität bei einem Anstieg der Hubbard-Abstoßung von $4t$ auf $8t$. Das bei $U = 4t$ deutliche Niederfrequenz-Maximum in $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ ist bei $U = 6t$ nur noch schwach ausgeprägt und wird bei $U = 8t$ zu einer Schulter des breiten Maximums um $\omega \sim 5t$.

Dieses Ergebnis stimmt mit der Identifizierung der Hubbard-Wechselwirkung als inverser Druck im gemeinsamen Phasendiagramm der $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ Verbindungen überein. In Abschnitt 4.2 wurde das Anwachsen antiferromagnetischer Spinfluktuationen mit U gezeigt. Das System bewegt sich mit steigender Hubbard-Abstoßung in Richtung der Niederdruck- bzw. Mott-Isolator-Phase. Dieses qualitative Verhalten wird auch experimentell in der optischen Leitfähigkeit der $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ beobachtet. Bei den Vertretern intermediären Drucks $\text{X}=\text{Cu}(\text{SCN})_2$ und $\text{X}=\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$ wird bei niedrigen Temperaturen ein Drude-Peak in Infrarot-Messungen beobachtet [42,43], während der Vertreter des Niederdruck-Bereichs $\text{X}=\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Cl}$ keinen Drude-Peak, sondern das Öffnen einer Halbleiter-Energielücke zeigt [142].

In Abb. 5.6(b) wird das Niederfrequenz-Maximum von $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ mit abnehmender Dotierung verstärkt. Seine Position verschiebt sich zu kleineren Frequenzen und das Minimum, welches die beiden Energieskalen trennt, wird deutlich ausgeprägt. Entsprechend ist der Drude-Peak in $\sigma(\omega)$ bei $\delta = -0.1$ gegenüber dem bei $\delta = +0.05$ um etwa einen Faktor drei erhöht. In den Abschnitten 4.2 und 4.3 wurde für $t' = 0.8t$ in Richtung geringerer Ladungsträgerdichte zum einen eine Zunahme der Inkommensurabilität des Paramagnon-Peaks beobachtet, zum anderen eine Verringerung der Ein-Teilchen-Streureate. Beides resultiert in einer verstärkten Drude-Leitfähigkeit. Die qualitative Diskussion der Parameterstudie wird abgeschlossen mit der Untersuchung des optischen Response bei Variation der diagonalen Kopplung t' in Abb. 5.6(c). Mit der Erhöhung der diagonalen Kopplung von $t' = 0.7t$ bis zum isotropen Dreiecksgitter wächst das Niederfrequenz-Maximum in $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ und entsprechend der Drude-Peak in $\sigma(\omega)$. Die Position des Niederfrequenz-Maximums verändert sich hier kaum, auch die Tiefe des anschließenden Minimums bleibt nahezu konstant.

Wie in Abb. 4.16 zu sehen war, führt die Erhöhung der geometrischen Frustration mit t' zu einer massiven Reduktion der Spinfluktuations-Amplitude aufgrund der Verschlechterung der Nesting-Situation. Die damit verbundene Reduktion der Ein-Teilchen-Streureate erhöht ebenfalls die Drude-Leitfähigkeit.

Wie erwartet dämpft die Streuung der Quasiteilchen den Drude-Peak in den drei Parametervariationen. Ein Vergleich mit der Impulsraumstruktur der Paramagnonen zeigt weiterhin, daß die Verstärkung des Drude-Peaks in $\sigma(\omega)$ über die Streureate mit einer Unterdrückung der Spinfluktuationen am kom-

mensurablen Wellenvektor \mathbf{Q}_{SQL} verbunden ist. Dabei ist es gleichgültig, ob die Unterdrückung bei \mathbf{Q}_{SQL} von einer Verschiebung der Paramagnon-Peaks oder der Verringerung ihrer Amplitude herrühren.

5.3.3 Die optische Relaxationsrate

Im folgenden werden die oben vorgestellten Ergebnisse quantitativ untersucht. Im Rahmen der Drude-Theorie ergibt sich die Strom-Suszeptibilität zu (siehe z.B. [82, 139])

$$\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega) = -\frac{ne^2}{m^*} \frac{1}{1 - i\omega\tau} \quad (5.16)$$

mit der Ladungsträgerdichte n , deren effektiver Masse m^* und der Relaxationszeit τ . Damit hat der Realteil der optischen Leitfähigkeit die Form einer Lorentz-Verteilung mit der Halbwertsbreite $1/\tau$

$$\sigma(\omega) = -\frac{\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)}{\omega} = \frac{ne^2}{m^*} \frac{1/\tau}{\omega^2 + (1/\tau)^2} . \quad (5.17)$$

Die Relaxationsrate $1/\tau$ ist Gegenstand der folgenden Betrachtungen. Im Ein-Teilchen-Bild entspricht sie der zweifachen durchschnittlichen Streurrate der Quasiteilchen.

Die Relaxationsrate kann hier zum einen aus der Position des Niederfrequenz-Peaks in Gl. (5.16) und zum anderen über die Halbwertsbreite des Drude-Peaks in Gl. (5.17) bestimmt werden. Der zweite Weg wird mit einem Fit mit der Methode der kleinsten Quadrate an die optische Leitfähigkeit durchgeführt.⁴

In Abb. 5.7 werden die auf beiden Wegen ermittelten Relaxationsraten mit und ohne Vertexkorrektur für die vorangegangenen Parametervariationen zusammengefaßt. Weiterhin ist die Ein-Teilchen-Streurate in Form des über die Fermifläche gemittelten negativen Imaginärteils der Selbstenergie bei der Fermi-Energie dargestellt. Der Anstieg der Relaxationsrate mit T , U und δ sowie der Rückgang mit t' entspricht der vorangegangenen qualitativen Diskussion.

⁴Der Hintergrund in $\sigma(\omega)$, der sich aus dem breiten Maximum in $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ um $\omega \sim 5t$ ergibt, wird in diesem Fit mit einer zweiten Lorentz-Kurve berücksichtigt. Auf diese Weise ist die Halbwertsbreite des Drude-Peaks stabil gegenüber der Stützstellenanzahl, bei der der Fit trunziert wird. (Der Drude-Peak hat mit $[0, \approx 0.3t]$ eine Ausdehnung von lediglich $\sim 1/100$ des gesamten berechneten Frequenzbereichs von $[0, 30t]$.)

Die mit der Position der Niederfrequenz-Maxima in $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ bestimmten Relaxationsraten (offene Kreise und Quadrate) sind systematisch geringfügig größer als die über die Halbwertsbreite von $\sigma(\omega)$ gefundenen (ausgefüllte Kreise und Quadrate). Erstere können nur bei den Parameterkombinationen angegeben werden, bei denen die Niederfrequenz-Peakposition von $\omega = 0$ und dem Peak der höheren Energieskala unterschieden werden kann. Die Differenz zwischen den mit den beiden Verfahren bestimmten Relaxationsraten kann zur Abschätzung ihres Fehlers benutzt werden. Der relative Fehler der beiden Werte wächst mit ihrem Absolutbetrag und liegt zwischen 1% und maximal 26%. Bei der Hälfte der Ergebnisse liegt er unter 10%.

Anhand der Relaxationsrate kann nun der Effekt der Vertexkorrektur quantifiziert werden. Die Vertexkorrektur verringert die Relaxationsrate (Quadrate in Abb. 5.7) in der vorliegenden Parameterstudie um 10% bis 30% gegenüber den Resultaten mit dem unrenormierten Strom-Vertex (Kreise). Der relative Fehler dieser Reduktion beträgt für fast alle Parameterkombinationen weniger als 4%. Somit ist der Effekt der Vertexkorrektur im Rahmen der Genauigkeit der Relaxationsrate deutlich feststellbar.

In Abb. 5.7 werden weiterhin die Zwei-Teilchen Relaxationsrate $1/\tau$ und die in Abschnitt 4.3 diskutierte Ein-Teilchen-Streureate $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\epsilon_F)$ gegenübergestellt. Beide Größen zeigen ähnliches Verhalten bei den Parametervariationen. Allerdings ist $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\epsilon_F)$ in allen Ergebnissen bis zu einem Faktor von ~ 3 größer als $1/\tau$. In einem System mit rein elastischer Streuung (Störstellenstreuung) ist die Relaxationsrate gerade die frequenzunabhängige Ein-Teilchen-Streureate Γ und es gilt $1/\tau = \Gamma = -2\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}$. Es ist zu klären, in wieweit die optische Relaxationsrate als Reflexion der Ein-Teilchen-Streureate auch in optischen Daten bei frequenzabhängiger Wechselwirkung angesehen werden kann. Die in Abschnitt 4.3 besprochene Anisotropie der Selbstenergie geht in die hier über die Fermifläche gemittelte Selbstenergie mit der in Abb. 5.1 gezeigten Gewichtung der Regionen der BZ in die Relaxationsrate $1/\tau$ ein. In korrelierten Systemen kann inelastische Streuung große Abweichungen zwischen $1/\tau$ und $-\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\epsilon_F)$ mit sich bringen. Die Frequenzabhängigkeit der Selbstenergie bietet also eine weitere Erklärung für die Abweichung der Zwei-Teilchen-Streureate von $-2\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\epsilon_F)$.

Die quantitative Diskussion wird abgeschlossen mit einem Vergleich der hier ermittelten Relaxationsraten mit experimentellen Daten für die organischen Verbindungen $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$. Die optische Leitfähigkeit aus Messungen der Infrarot Reflexivität ergibt für $\text{X}=\text{Cu}(\text{NCS})_2$ bei $T = 12\text{K}$ ($> T_c = 10.4\text{K}$) einen Drude-Peak mit einer Halbwertsbreite von $\sim 5\text{meV}$ [42, 143] und für $\text{X}=\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})]_2\text{Br}$ bei $T = 10\text{K}$ ($< T_c = 11.6\text{K}$) von $\sim 3\text{meV}$ [43]. Die Drude-

Peaks verschwinden jeweils vollständig bei einer Erhöhung der Temperatur auf $T > 40\text{K}$.

Mit der Schätzung des Hüpfmatrixelements für nächste Nachbarn $t \approx 52.5\text{meV}$ [5] und des diagonalen Hüpfmatrixelements $t' = 0.8t$ ergibt sich bei $U = 6t$, halber Füllung $\delta = 0.0$ und einer Temperatur von $T = 0.02t = 12.2\text{K}$ eine Relaxationsrate von $1/\tau = 0.5\text{meV}$ ohne Vertexkorrektur bzw. 0.3meV mit Vertexkorrektur. Der Drude-Peak verschwindet bei einer Temperaturerhöhung auf $T = 0.1t = 60.9\text{K}$. Das vorliegende, gegenüber den tatsächlichen Verbindungen vereinfachte Modell unterschätzt die experimentellen Relaxationsraten um etwa eine Größenordnung. Die Temperaturabhängigkeit des Drude-Peaks wird gut reproduziert.

Das im Experiment gefundene anormal breite Maximum im mittleren Infrarotbereich bei 300meV bzw. 400meV wird in [43] mit Interband-Übergängen identifiziert und ist im vorliegenden Ein-Band Hubbard-Modell nicht zu beobachten.

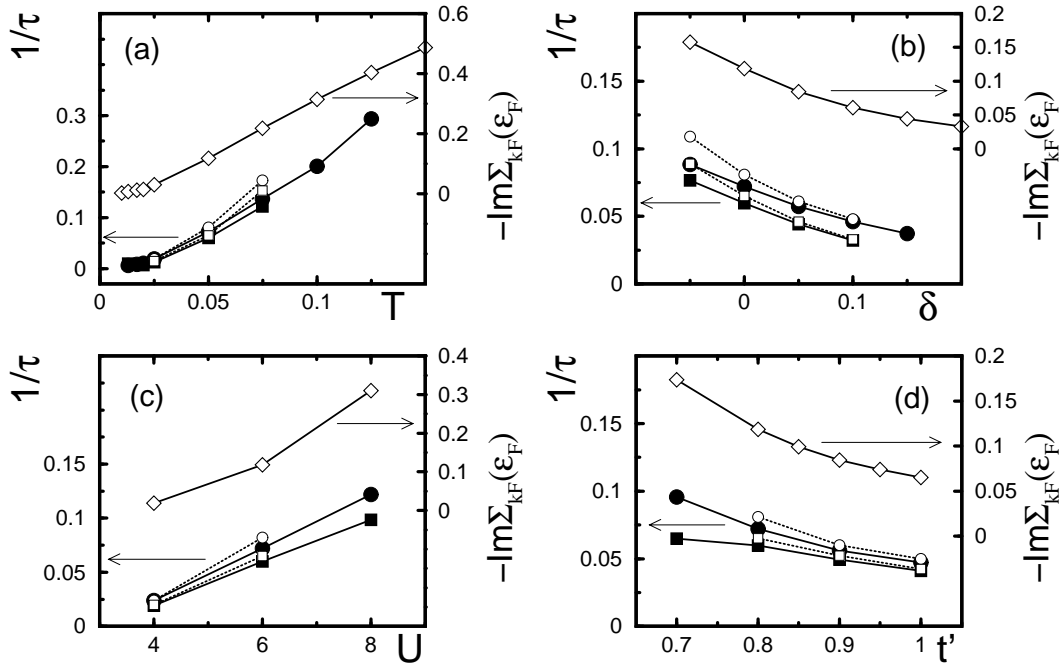


Abbildung 5.7: Vergleich der Ein- und Zwei-Teilchen-Streuratens bei Variation (a) der Temperatur T , (b) der Dotierung δ , (c) der Hubbard-Abstoßung U und (d) des diagonalen Hüpfmatrixelements t' . Ausgefüllte Kreise und Quadrate bezeichnen Zwei-Teilchen-Streuratens $1/\tau$ mit und ohne Vertexkorrektur, die aus Lorentz-Fits an $\sigma(\omega)$ bestimmt wurden. Offene Kreise und Quadrate bezeichnen die entsprechenden, durch die Peak-Position in $\text{Im}\chi_{jj}(\mathbf{q} = 0, \omega)$ bestimmten Streuratens. Rauten bezeichnen die über die Fermifläche gemittelte Ein-Teilchen-Streureate $\text{Im}\Sigma_{\mathbf{k}_F}(\epsilon_F)$. Die Ein-Teilchen-Streureate ist aus Gründen der Übersichtlichkeit nach oben verschoben. Die Pfeile zeigen in Richtung der jeweils relevanten Achsen.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Diskussion

In dieser Arbeit wurde das Ein-Band Hubbard-Modell auf dem anisotropen und isotropen Dreieckgitter mit der Methode der Fluktuations-Austausch-Näherung untersucht. Diese selbstkonsistente diagrammatische Methode erfüllt per Konstruktion Ein-Teilchen-Erhaltungssätze nach Kadanoff und Baym [78,79] und ermöglicht die Betrachtung des Hubbard-Modells bei Wechselwirkungsstärken U bis zur Größe der Bandbreite von $W \sim 9t$, endlicher Dotierung δ und tiefen Temperaturen.

Mit der diagonalen Kopplung t' zu übernächsten Nachbarn in nur *eine* Richtung geht das System kontinuierlich von dem $t-U$ Modell auf dem Quadratgitter ($t' = 0$) in das des Dreieckgitters ($t' = t$) über. Es wurden diagonale Kopplungen von $t' = 0.7t$ bis $t' = t$ sowie Wechselwirkungsstärken bis $U = 8t$ bei mittleren und tiefen Temperaturen $T = 0.01t - 0.2t$ in einem weiten Dotierungsbereich von bis zu $\delta = \pm 0.4$ im normalleitenden Zustand betrachtet. Somit umschließt der Parameterbereich sowohl die Modellierung organischer Supraleiter der Klasse κ -(ET)₂X im Dimer-Modell nach [5] als auch das Natrium-Kobalt-Oxyhydrat, bei dem im Jahr 2003 Supraleitung entdeckt wurde [13]. Ausgangspunkt der Betrachtungen zum Dimer-Modell der κ -(ET)₂X ist das anisotrope Dreieckgitter mit $t' = 0.8t$ bei halber Füllung. Bei Na_{0.35}CoO₂ · 1.3H₂O liegt ein isotropes Dreieckgitter mit einer Dotierung weit entfernt von halber Füllung vor. Ein lokales Minimum in der LDA-Bandstruktur der Ausgangssubstanz NaCo₂O₄ [59] im Zentrum der BZ motiviert die Berücksichtigung von Hüpfprozessen zu übernächsten Nachbarn im $t-t''-U$ Modell mit $t'' = -0.45t$.

Ein zentraler Punkt ist die Frage nach den Auswirkungen der topologischen Frustration auf dem (an)isotropen Dreieckgitter und der Vergleich mit Ergebnissen auf dem Quadratgitter. Topologische Frustration tritt bereits auf

einer Plakette mit drei Plätzen und je einem Elektron pro Platz auf. Dort ist keine Anordnung möglich, bei der sich alle drei Spins entlang der Bindungen paarweise antiparallel ausrichten können. Trotz der hiermit verbundenen Erhöhung der Grundzustandsenergie [144] wird im Heisenberg-Modell auf dem Dreieckgitter langreichweitige Néel-Ordnung bei endlichen Systemen gefunden [21, 22].

Auf dem hier betrachteten anisotropen Dreieckgitter ist zudem die Kopplung entlang einer der drei Bindungen schwächer. Während im $t - U$ Modell auf dem Quadratgitter die Van-Hove-Singularität der Teilchen-Loch-symmetrischen Zustandsdichte, perfektes Nesting der Fermifläche und starke antiferromagnetische Spinfluktuationen bei halber Bandfüllung zusammenfallen, tritt dies auf dem (an)isotropen Dreieckgitter gerade nicht gemeinsam auf. Die gegenseitigen Abhängigkeiten dieser Größen wurden hier studiert.

Die Teilchen-Loch-Asymmetrie der Zustandsdichten in den vorliegenden Topologien des anisotropen und isotropen Dreieckgitters erfordert die Festlegung des Vorzeichens des Hüpfmatrixelements t . Es wird hier $t = +1$ gesetzt. Die unrenormierten Zustandsdichten weisen für $t' < t$ zwei Singularitäten bei positiven Energien auf, die mit wachsendem t' aufeinander zuwandern, um bei $t' = t$ zusammenzufallen. Die Kopplung zu übernächsten Nachbarn t'' führt zu einer Singularität am unteren Bandende sowie zu einer Verschiebung des nun schwächer ausgeprägten Maximums von $\epsilon_{\mathbf{k}}^0 = +2t$ zu $+t$. Die Form der unrenormierten Zustandsdichten mit mehr als einer Singularität wird bei endlicher Hubbard-Abstoßung nicht aufrechterhalten. Mit wachsendem U werden die Zustandsdichten ausgewaschen. Im wesentlichen verbleibt auf allen Gittern eines der Maxima oberhalb der Fermi-Energie ϵ_F bei halber Füllung. Die Renormierung verringert die Dotierung, bei der die Fermi-Energie mit der Lage der Van-Hove-Singularität der Zustandsdichte übereinstimmt, im Fall des isotropen Dreieckgitters von $\delta = +0.5$ zu $\delta = +0.35$.

Die Quasiteilchendisersion $\epsilon_{\mathbf{k}}$ erfährt bei $U > 0$ eine erhebliche Renormierung mit einer Abflachung in der Umgebung der gesamten Fermifläche. Gemessen mit einer um die Fermi-Energie an die renormierte Dispersion angeschmiegtten effektiven Dispersion, verringert sich das effektive Hüpfmatrixelement \tilde{t} bis zu $\tilde{t} \approx 0.4t$. Weiterhin ist für $t' < t$ in der effektiven Dispersion die effektive diagonale Kopplung \tilde{t}'/\tilde{t} und damit der Dreieck-Charakter des Gitters um bis zu 20% herabgesetzt.

Wie auch auf dem Quadratgitter führen die Sattelpunkte bei $(\pm\pi, 0)$ und $(0, \pm\pi)$ schon in der unrenormierten Dispersion zu flachen Bereichen und einer damit einhergehenden lokal erhöhten Zustandsdichte. Die Annäherung der Fermifläche an diese Bereiche wird von der diagonalen Kopplung und der

Dotierung bestimmt. Dargestellt in der Topologie des Quadratgitters haben die geschlossenen Fermiflächen bei halber Füllung eine elliptische Form, wobei die lange Halbachse mit t' wächst. Im Fall des isotropen Dreieckgitters kann die hexagonale Symmetrie der Fermifläche mit einer Koordinatentransformation hergestellt werden. Im $t - U$ Modell ist die Fermifläche für $\delta \leq 0$ nahezu radialsymmetrisch, bei $\delta = +0.35$ hexagonal. Im $t - t'' - U$ Modell wird die hexagonale Form bereits bei $\delta \leq 0$ erreicht.

Die Streurate der Quasiteilchen, gegeben durch den Imaginärteil der Selbstenergie an den Fermi-Impulsen und bei der Quasiteilchen-Energie, weist ab der Wechselwirkungsstärke $U \sim 4t$ für einige Kombinationen von t' und δ eine deutliche Anisotropie mit Minima entlang den BZ-Diagonalen (in der Topologie des Quadratgitters) und ausgedehnten Maxima in den Richtungen $(\pm\pi, 0)$ und $(0, \pm\pi)$ auf. In letzteren Bereichen ist in den Spektralfunktionen beim Übergang über die Fermi-Energie eine entsprechende Verbreiterung der Quasiteilchen zu beobachten. Die erhöhte Streurate kann zum einen auf die lokal erhöhte Zustandsdichte und zum anderen auf die Nesting-Eigenschaften der Fermifläche zurückgeführt werden. Da sich die Fermifläche mit wachsendem t' von den Sattelpunkten der Dispersion entfernt, ist bei halber Füllung die Anisotropie besonders ausgeprägt für $t' = 0.7t$ sowie für $t' > 0.7t$ bei positiven Dotierungen. Auf dem isotropen Dreieckgitter führt das Zusammenspiel von t' und δ im $t - U$ Modell zu einer nahezu isotropen Streurate entlang der gesamten Fermifläche, die mit der Dotierung wächst. Die Verschiebung des spektralen Gewichts an das untere Bandende mit t'' reduziert die Streurate im $t - t'' - U$ Modell bei $\delta \geq 0$ erheblich. Die vom Quadratgitter bekannten scharf definierten *hot spots* bleiben bei allen hier betrachteten Gittern aus.

Auf der Fermifläche zeigt die Quasiteilchen-Streurate bei tiefen Temperaturen den für eine normale Fermiflüssigkeit erwarteten quadratischen Anstieg mit T , für hohe Temperaturen wird dieser linear. Der Übergang zwischen dem Verhalten entsprechend der für $T \rightarrow 0$ definierten Fermiflüssigkeit und einem Bereich starker Streuung an Spinfluktuationen ist auf dem (an)isotropen Dreieckgitter in der FLEX-Näherung zugänglich. Für die diagonale Kopplung $t' = 0.8t$ der organischen Verbindungen $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ wurde die Übergangstemperatur T' zwischen den beiden Regimen bestimmt. Sie sinkt mit wachsender Hubbard-Abstoßung. Mit einer Abschätzung der Hüpfmatrixelemente und der Hubbard-Abstoßung der organischen Verbindungen stimmt die Übergangstemperatur gut mit der experimentell beobachteten Änderung des Anstiegs im temperaturabhängigen Widerstand bei $T \sim 46\text{K} \sim 0.075t$ überein.

Die quadratische Energieabhängigkeit der Streurate in der Umgebung der

Fermi-Energie bei allen Temperaturen, Dotierungen und diagonalen Kopplungen zeigt wieder das Verhalten einer normalen Fermiflüssigkeit.

Die Renormierung der Quasiteilchen wird im vorliegenden Modell praktisch vollständig durch Streuung an Paramagnonen bestimmt. Die Paramagnonen treten hier in der Spinfluktuations-Streumatrix T_{sf} auf. Maxima der T_{sf} -Matrix werden Paramagnon-Peaks genannt. Da Real- und Imaginärteil der T_{sf} -Matrix miteinander verbunden sind, impliziert ein Anstieg des statischen Spin-Strukturfaktors $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ eine Zunahme des spektralen Gewichts bei kleinen Energien auch in $\text{Im}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega)$. Somit kann anhand von $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ die Impulsraumstruktur der Paramagnonen untersucht werden, während die Lage des Maximums in $\text{Im}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega)$, die Spinfluktationsfrequenz ω_{sf} , ihre Energieskala festlegt. Auf dem Quadratgitter tritt ein dominantes Maximum im statischen Spin-Strukturfaktor mit dem Wellenvektor $\mathbf{q} = \mathbf{Q}_{SQL} = (\pi, \pi)$ als Vorbote des antiferromagnetischen Grundzustands bei $T = 0$ und halber Füllung in Erscheinung. Im symmetriebrochenen Zustand hat die Spindichtewelle (SDW) mit dem antiferromagnetischen Wellenvektor \mathbf{Q}_{SQL} die Periodizität des Quadratgitters, sie ist mit dem Gitterkommensurabel. Auf den (an)isotropen Dreiecksgittern werden inkommensurable Impulsraumstrukturen der Spinfluktuations-Streumatrix beobachtet und die maximale Amplitude der Paramagnon-Peaks ist um mehr als eine Größenordnung geringer als auf dem Quadratgitter. Weiterhin ist anhand des verallgemeinerten Stoner-Kriteriums ein deutlicher Abstand zur Instabilität gegenüber einer Spindichtewelle festzustellen.

Die zwei Parameterkombinationen ($t' = 0.7t, \delta = +0.1$) und ($t' = t, \delta = -0.35$) markieren hierbei Randpunkte des betrachteten Parameterraums mit starken Spinfluktuationen *unterschiedlicher* Symmetrie. Sie weisen die größte Annäherung an SDW-Instabilitäten sowie die kleinsten Spinfluktationsfrequenzen ω_{sf} auf. Während auf dem Quadratgitter die Spinfluktationsfrequenz schon bei mittlerer Wechselwirkungsstärke unterhalb der Temperatur liegt, so daß große Teile der Spinfluktationen thermisch angeregt sind, wird $\omega_{sf} < T$ auf den (an)isotropen Dreiecksgittern nur bei den beiden oben genannten Parameterkombinationen im $t - U$ bzw. $t - t' - U$ Modell und bei einer großen Hubbard-Wechselwirkung von $U = 8t$ realisiert.

Die Impulsabhängigkeit des statischen Spin-Strukturfaktors ist ein geeigneter Indikator für das Studium der wechselnden Symmetrie der Paramagnonen zwischen den beiden extremalen Parameterkombinationen. Er hängt von dem Zusammenspiel der diagonalen Kopplungsstärke t' und der Dotierung δ ab. Mit der diagonalen Kopplung wird die Topologie des Gitters und damit die Dispersion festgelegt. Die Dotierung bestimmt nun die Form und Ausdehnung der Fermifläche und damit deren Nesting-Eigenschaften. Nesting liegt

an den Punkten vor, die die Nesting-Bedingung $\epsilon_{\mathbf{k}} = -\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}$ mit dem Wellenvektor \mathbf{q} eines Paramagnon-Peaks erfüllen. Im $t - U$ Modell des Quadratgitters ist dies bei halber Füllung mit $\mathbf{q} = \mathbf{Q}_{SQL} = (\pi, \pi)$ auf der gesamten Fermifläche der Fall. Dort liegt *perfektes Nesting* vor. Auf den (an)isotropen Dreieckgittern kann die Nesting-Bedingung nur näherungsweise für Teile der Fermifläche und zum Teil mit inkommensurablen Impulsen erfüllt werden. Im Fall $t' = 0.7t$ und $\delta = +0.1$ liegt ein Paramagnon-Peak am Wellenvektor des Quadratgitters \mathbf{Q}_{SQL} vor. Hier können Quasiteilchen auf nahezu parallelen, quasi-eindimensionalen Teilen der Fermifläche an Spinfluktuationen mit Impulsen nahe \mathbf{Q}_{SQL} streuen. Die diagonale Kopplung führt zu einem, verglichen mit dem Quadratgitter, länglich deformierten und stark verbreiterten Paramagnon-Peak. Im Fall $t' = t$ und $\delta = -0.35$, also der Dotierung des supraleitenden $\text{Na}_{0.35}\text{CoO}_2 \cdot 1.3\text{H}_2\text{O}$, wird hingegen ein scharfes Maximum des statischen Spin-Strukturfaktors an den kommensurablen Impulsen des Dreieckgitters, z.B. $\mathbf{Q}_{TL1} = 2/3(\pi, \pi)$, beobachtet. Die Verstärkung der hexagonalen Form der Fermifläche mit t'' verbessert dabei im $t - t'' - U$ Modell die Nesting-Eigenschaften und erhöht die Amplitude des Paramagnon-Peaks. Die Symmetrie der stärksten Spinfluktuationen wechselt zwischen den beiden Parameterkombinationen *nicht* kontinuierlich von der Symmetrie des Quadratgitters zu der des Dreieckgitters. Mit zunehmender diagonaler Kopplung kann der Paramagnon-Peak bei \mathbf{Q}_{SQL} mit ebenfalls wachsender Dotierung aufrechterhalten werden, während dasjenige bei \mathbf{Q}_{TL} bei nahezu konstanter negativer Dotierung mit t' anwächst. Die Amplitude des statischen Spin-Strukturfaktors ist in den kommensurablen Fällen jeweils maximal, wobei sie auf dem Dreieckgitter kleiner als auf dem Quadratgitter ausfällt. Bei der für die $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ relevanten halben Bandfüllung weist $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega = 0)$ für alle t' eine Doppelpeakstruktur um $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ auf, die wieder gut mit den Nesting-Eigenschaften erklärbar ist. Bemerkenswerterweise verringert sich der Abstand x des Paramagnon-Peaks zum Impuls \mathbf{Q}_{SQL} für alle t' linear mit wachsender Dotierung. Weiterhin ist an \mathbf{Q}_{SQL} und ebenfalls für alle t' ein Pinning der Peaks in einem gewissen Dotierungsbereich zu beobachten. Dies kann in Richtung \mathbf{Q}_{TL} , also für negative Dotierungen, nicht festgestellt werden.

Es wurden die Strom-Strom-Suszeptibilität und die optische Leitfähigkeit des Hubbard-Modells auf dem (an)isotropen Dreieckgitter berechnet. Dazu wurde eine genäherte Vertexkorrektur berücksichtigt, die die Teilchenzahlerhaltung gewährleistet. Wie auch im Raman-Response auf dem Quadratgitter [66] verändert die Vertexkorrektur die Ergebnisse nur unwesentlich. Eine Beschreibung der optischen Leitfähigkeit auf dem (an)isotropen Dreieckgitter im Ein-Teilchen-Bild ist also gerechtfertigt. In der Strom-Strom-

Suszeptibilität treten zwei Energieskalen auf, wobei die optische Leitfähigkeit von den niederenergetischen Anregungen bestimmt wird.

In der frequenzabhängigen optischen Leitfähigkeit wird ein Drude-Peak beobachtet, dessen Amplitude sich in einer Parameterstudie invers zu der mit T, t', δ und U festgelegten Korrelationsstärke im Modell verändert. Der schnelle Abfall des Drude-Peaks mit wachsender Temperatur reproduziert qualitativ das experimentell gefundene Verhalten von $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ mit $\text{X}=\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$ und $\text{Cu}(\text{NCS})_2$. Quantitativ unterschätzt die aus dem Drude-Peak ermittelte optische Zwei-Teilchen-Streureate des Dimer-Modells die experimentelle um eine Größenordnung.

Die in dieser Arbeit vorgenommene Erweiterung des Dotierungsbereichs um halbe Füllung ist wesentlich für das Verständnis dafür, wie die diagonale Kopplung und die Dotierung zusammen die Nesting-Eigenschaften und den Symmetrieübergang im Ein-Band Hubbard-Modell auf den (an)isotropen Dreiecksgittern bestimmen. So wurde gezeigt, wie die geometrische Frustration beim kontinuierlichen Übergang vom Quadrat- zum Dreieckgitter die Stärke der elektronischen Korrelationen beeinflusst. Die Spektralfunktionen und die frequenzabhängige Selbstenergie zeigen Fermiflüssigkeitsverhalten. Die auf dem Quadratgitter beobachteten *hot spots* in der Ein-Teilchen-Streureate und eine Pseudolücke in der lokalen und globalen Zustandsdichte bleiben aus. Eine ähnliche Unterdrückung von Spinfluktuationen wurde mit dieser Methode auf dem Kagomé-Gitter beobachtet [108].

Die Relevanz des Dimer-Modells nach [5] und der Spinfluktuationen für die organischen Verbindungen $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ konnte bestätigt werden. Ein Vergleich mit Messungen zum Drude-Peak in der optischen Leitfähigkeit und dem temperaturabhängigen Widerstand zeigt, daß das vorliegende Modell wesentliche experimentelle Resultate reproduziert. Außerdem konnte in einigen Punkten Übereinstimmung mit Mehrband-Modellen [75] erzielt werden. Bezüglich der Identifikation des Drucks im gemeinsamen Phasendiagramm der $\kappa\text{-(ET)}_2\text{X}$ konnte eine Abhängigkeit sowohl von der diagonalen Kopplung t' als auch von der Hubbard-Abstoßung U herausgestellt und quantifiziert werden.

Die in 2003 als supraleitend identifizierte Verbindung $\text{Na}_{0.35}\text{CoO}_2 \cdot 1.3\text{H}_2\text{O}$ wurde mit dem $t - U$ und $t - t'' - U$ Modell untersucht. Bei der Dotierung der supraleitenden Vertreter $\delta = -0.35$ wurden mit dem Dreieckgitter kommensurable Spinfluktuationen gefunden. Die Hinzunahme von $t'' = -0.45t$ führt zu einer mit LDA-Rechnungen [59] und winkelaufgelösten Photoemissionsmessungen (ARPES) [104] übereinstimmenden Fermifläche, verbesserten Nesting-Eigenschaften und einer Verstärkung der Spinfluktuationen. Allerdings unterstreicht die jeweils geringe Streureate bei $\delta = -0.35$ die Notwendigkeit weiterer Untersuchungen speziell der Zustandsdichte in diesem Material.

Bezüglich des Natrium-Kobalt-Oxyhydrats ist eine Erweiterung der Untersuchungen zur optischen Leitfähigkeit bei hohen Dotierungen $\delta = \pm 0.35$ sinnvoll. Weiterhin ist eine Übertragung der Vertexkorrektur auf die Zweiteilchen-Größe des Raman-Responses auf dem (an)isotropen Dreieckgitter analog zu [66] möglich. Die Anpassung der in der FLEX-Näherung bestimmten Spektralfunktionen mit einem Untergrund, der dem experimentellen ähnlich ist, erlaubt einen Vergleich mit den kürzlich vorgenommenen ARPES Messungen [103, 104] der Ausgangsverbindung NaCo_2O_4 .

Anhang A

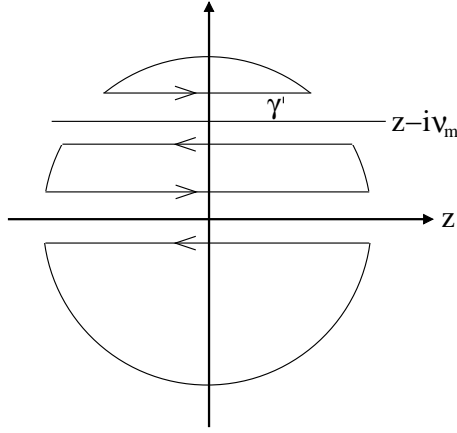
Implementierung der FLEX Selbstkonsistenz-Gleichungen

A.1 Die FLEX Selbstkonsistenz-Gleichungen auf der γ -Contour

Die mit Matsubara-Frequenzen formulierten FLEX Selbstkonsistenz-Gleichungen (SK-Gleichungen) (3.1)-(3.6) werden für das Hubbard-Modell sowohl auf dem Quadrat- als auch auf dem (an)isotropen Dreieckgitter häufig auf der imaginären Achse gelöst. Zum Studium der dynamischen Anregungen ist eine analytische Fortsetzung der Ergebnisse auf die reelle Achse notwendig. Die Tatsache, daß dabei bereits kleinste Änderungen in $G_{\mathbf{k}}(i\omega_n)$ große Änderungen in $G_{\mathbf{k}}(\omega + i0^+)$ bewirken, macht die analytische Fortsetzung numerisch kritisch [125, 129]. Eine alternative Fortsetzung der Gleichungen auf die reelle Achse ist insofern problematisch, als daß speziell auf dem Quadratgitter nahe halber Füllung auftretende kleine Energieskalen, nämlich die Spinfluktationsfrequenz ω_{sf} , aufgelöst werden sollen. Dies erfordert entweder die Verwendung einer sehr feinen, äquidistanten Diskretisierung des Frequenzraums oder eine nichtäquidistante Wahl der Stützstellen (wieder mit hoher Stützstellendichte um $\omega = 0$ [63, 126]). Die erste Variante ist Speicher- und Rechenzeit-intensiv, die zweite muß auf eine Beschleunigung durch das Ausnutzen schneller Fourier-Transformationen verzichten.

In dieser Arbeit werden die FLEX SK-Gleichungen (3.1)-(3.6) analytisch fortgesetzt auf einer Contour mit *endlichem* Abstand $i\gamma$ zu der reellen Achse, der γ -Contour, gelöst. Die damit verbundene Verbreiterung von auf der reellen Achse scharfen Peaks ermöglicht die Auflösung kleiner Energieskalen bei Verwendung eines äquidistanten Gitters. Im Folgenden wird das in [129] vorgeschlagene und in dieser Arbeit verwendete Verfahren vorgestellt.

Die in den Gleichungen (3.4) und (3.6) auftretenden Faltungen im Impulsraum werden als Produkte der Funktionen im Fourierraum berechnet. Dazu werden die Funktionen mit zweidimensionalen Fourier-Transformationen im Ortsraum \mathbf{R} dargestellt. Nach der Berechnung der Produkte der ortsabhängigen Funktionen wird die Faltung mit der Rücktransformation in den Impulsraum abgeschlossen.



Die Summation von Matsubara-Frequenzen in den Gleichungen (3.1) und (3.4) wird mit einer Standard-Contour-Integration [139] entlang der nebenstehenden Wege durchgeführt. An den möglichen Verzweigungsschnitten $z = \omega$ und $z = \omega - i\nu_m$ wird die Contour aufgetrennt und es bleiben je zwei Integrale mit endlichem Abstand γ' zu den Schnitten. Zusammen mit der analytischen Fortsetzung $i\nu_m \rightarrow \omega + i\gamma$ mit $\gamma = \gamma' + 0^+$ und der Fourier-Transformation in den Ortsraum ergibt sich Gl. (3.4) zu

$$\begin{aligned} \chi_{\mathbf{R}}^0(\omega + i\gamma) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\epsilon}{2\pi i} \{ & n_F(\omega + i\gamma') G_{-\mathbf{R}}(\epsilon + i\gamma') G_{\mathbf{R}}(\epsilon - \omega - i\gamma + i\gamma') \\ & - n_F(\omega - i\gamma') G_{-\mathbf{R}}(\epsilon - i\gamma') G_{\mathbf{R}}(\epsilon - \omega - i\gamma - i\gamma') \\ & + n_F(\omega + i\gamma') G_{\mathbf{R}}(\epsilon + i\gamma') G_{-\mathbf{R}}(\epsilon + \omega + i\gamma + i\gamma') \\ & - n_F(\omega - i\gamma') G_{\mathbf{R}}(\epsilon - i\gamma') G_{-\mathbf{R}}(\epsilon + \omega + i\gamma - i\gamma') \} . \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

Die Abstände γ und γ' werden so gewählt, daß die Contour alle Matsubara-Frequenzen enthält.¹ Ersetzt man die jeweils zweite Greensfunktion in Gl. (A.1) durch ihre Spektraldarstellung und identifiziert die so entstandenen Nenner mit den Laplace-Transformationen

$$\frac{1}{\omega \pm i\gamma} = \mp i \int_0^{\infty} dt e^{i(\omega \pm i\gamma)t} , \quad (\text{A.2})$$

ergibt sich

$$\chi_{\mathbf{R}}^0(\omega + i\gamma) = \int_0^{\infty} dt \chi_{\mathbf{R}}^0(t) e^{i(\omega + i\gamma)t} \quad (\text{A.3})$$

¹Die Contour umschließt alle fermionischen Matsubara-Frequenzen und alle bosonischen bis auf $i\nu_0 = 0 + i0$. Letztere wird gesondert behandelt (s.u.).

als Laplace-Transformierte der zeitabhängigen Form

$$\begin{aligned} \chi_{\mathbf{R}}^0(t) = & -i(2\pi)^2 \left\{ \rho_{\mathbf{R}}(t) [A_{-\mathbf{R}}(-t)e^{2\gamma t} + A_{-\mathbf{R}}^*(t)] \right. \\ & \left. - \rho_{-\mathbf{R}}^*(t) [A_{\mathbf{R}}^*(-t)e^{2\gamma t} + A_{\mathbf{R}}(t)] \right\}, \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

wobei

$$\rho_{\mathbf{R}}(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \frac{-1}{\pi} \text{Im } G_{\mathbf{R}}(\omega + i\gamma) e^{-i\omega t} \quad (\text{A.5})$$

$$A_{\mathbf{R}}(t) = \frac{i}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} n_F^*(\omega + i\gamma) G_{\mathbf{R}}^*(\omega + i\gamma) e^{-i\omega t} \quad (\text{A.6})$$

wieder Fourier-Transformierte der Spektralfunktion bzw. des Produkts aus der Greensfunktion und der komplexwertigen Fermiverteilung $n_F(z)$ sind. Die zweidimensionale Rücktransformation $\mathbf{R} \rightarrow \mathbf{k}$ schließt die Impulsraumfaltung ab. Die anschließende Berechnung der Streumatrizen der Gleichungen (3.2) und (3.3) und der effektiven Wechselwirkung aus Gl. (3.5) erfolgt algebraisch in der Darstellung $(\omega + i\gamma, \mathbf{k})$.

Bei der Berechnung der Selbstenergie $\Sigma_{\mathbf{k}}(i\omega_n)$ in Gl. (3.1) wird analog zum oben beschriebenen Weg vorgegangen. Da nun über ein Produkt einer fermionischen und einer bosonischen Funktion summiert wird, erscheinen in Gl. (A.7) bosonische Äquivalente zu den Gleichungen (A.5) und (A.6). $v_{\mathbf{R}}(t)$ entspricht $\rho_{\mathbf{R}}(t)$ mit $\text{Im} G_{\mathbf{R}}(\omega + i\gamma)$ ersetzt durch den Imaginärteil der Wechselwirkung $\text{Im} V_{\mathbf{R}}(\omega + i\gamma)$. Ersetzt man weiterhin in Gl. (A.6) das Produkt $(n_F G)^*$ durch das komplex konjugierte Produkt der Bose-Verteilung mit der bosonischen effektiven Wechselwirkung $(n_B V)^*$, erhält man $B_{\mathbf{R}}(t)$. Der Fall $i\omega_{n'} = i\omega_n$ kann nicht in die Contour aufgenommen werden, da hierfür das Potential $V_{\mathbf{R}}(i\nu_{n'-n} = 0)$ genau auf der reellen Achse auszuwerten ist. Für seine Behandlung bietet sich eine analytische Fortsetzung von der γ -Contour auf die reelle Achse bei $\omega = 0$ an. Hieraus resultiert der erste Term in Gl. (A.7). Zusammen ergibt sich für die Selbstenergie die Laplace-Transformation $\Sigma_{\mathbf{R}}(\omega + i\gamma) = \int_0^{\infty} dt \Sigma_{\mathbf{R}}(t) e^{i(\omega \pm i\gamma)t}$ von

$$\begin{aligned} \Sigma_{\mathbf{R}}(t) = & -i(2\pi) \quad T \quad V_{\mathbf{R}}(0 + i0) G_{\mathbf{R}}(\omega + i\gamma) e^{\gamma t} \\ & + i(2\pi)^2 \quad \left\{ \quad v_{\mathbf{R}}(t) [A_{\mathbf{R}}(t) + A_{\mathbf{R}}^*(-t) e^{2\gamma t}] \right. \\ & \quad \left. - \quad \rho_{\mathbf{R}}(t) [B_{\mathbf{R}}^*(t) + B_{\mathbf{R}}(-t) e^{2\gamma t}] \right\} . \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

Nach der Rücktransformation $\mathbf{R} \rightarrow \mathbf{k}$ wird mit der Dyson-Gleichung (3.6) die renormierte Greensfunktion der aktuellen Iteration berechnet.

A.2 Die Fouriertransformationen

Für die Fourier- und Laplace-Transformationen der Contour-Integrationen und der Impulsraum-Faltungen aus Abschnitt A.1 werden D+1 schnelle Fourier-Transformationen (FFT) verwendet.

Mit der Annahme von periodischen Randbedingungen für die BZ in Richtung k_x und k_y entkoppeln die Fourier-Transformationen zwischen Impuls- und Ortsraum in jeweils eine komplexe FFT für jede Richtung.

Anhand von Gl. (A.5) wird die diskrete Fourier-Transformation $\omega + i\gamma \rightarrow t$ vorgestellt. Da die Stützstellen der Funktionen jeweils symmetrisch um den Ursprung liegen, ergeben sich bei den Transformationen Faktoren der Form $(-1)^n$. Mit der Anzahl $N = 2^j$ der äquidistanten Stützstellen² $\epsilon_m = m \Delta\epsilon$ bzw. $t_n = n \Delta t$ hat Gl. (A.5) die Form

$$\begin{aligned} \rho(t_n) &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\epsilon}{2\pi} \frac{-1}{\pi} \text{Im } G(\epsilon + i\gamma) e^{-i\epsilon t} \\ &\approx \sqrt{N} \frac{\Delta\omega}{2\pi} \sum_{m=-N/2}^{N/2-1} \frac{-1}{\pi} \text{Im } G(\epsilon_m + i\gamma) e^{-i\Delta\epsilon \Delta t m n} \\ &\approx \sqrt{N} \frac{\Delta\omega}{2\pi} (-1)^n \sum_{m=0}^{N-1} \left[(-1)^m \frac{-1}{\pi} \text{Im } G(\epsilon_m + i\gamma) \right] e^{-i\frac{2\pi}{N}(m-1)(n-1)} . \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

Dabei sind m und n ganzzahlige Indizes der Stützstellen zwischen 0 und $N - 1$.

Mit dem verwendeten Frequenzbereich $[-30t, 30t]$ und 4096 äquidistanten Stützstellen ergibt sich eine Frequenzauflösung von $\Delta\epsilon = 0.0146t$ und entsprechend mit der Auflösung $\Delta t = \frac{2\pi}{N\Delta\epsilon}$ der Zeitbereich von ca. $[-219.5\frac{1}{t}, 219.5\frac{1}{t}]$.

²Zur Abgrenzung gegenüber den fermionischen Matsubara-Frequenzen $i\omega_n$ erfolgt die diskretisierte Darstellung der reellen Frequenz mit der Variable ϵ .

Die Verwendung der diskreten Fourier-Transformationen impliziert die Annahme von periodischen Funktionen. Für die zweidimensionalen Fourier-Transformationen zwischen \mathbf{k} und \mathbf{R} ist dies aufgrund der periodischen BZ erfüllt. Bei den Fourier- und Laplace-Transformationen zwischen der frequenz- und zeitabhängigen Darstellung entsteht ein Fehler durch den Überlapp der an den Rändern noch nicht auf null abgefallenen Funktionen und ihren periodischen Fortsetzungen. Der endliche Abstand $i\gamma$ zur reellen Achse dämpft alle Funktionen exponentiell, was zusammen mit der Größe des Integrationsintervalls bei der Teilchen-Loch-Blase aus Gl. (A.4) zu einem vernachlässigbar kleinen Fehler führt. Auch die Fourier-Transformationen $\omega + i\gamma \rightarrow t$ sind daher unproblematisch.

Der Realteil der Selbstenergie in Gl. (A.7) fällt mit $\sim 1/\omega$ ab. Hier wird bei der Laplace-Transformation mit der in [129] vorgeschlagenen Korrektur der *Alias*-Fehler der einfachen FFT umgangen. Von $\Sigma_{\mathbf{R}}(t)$ wird eine mit $\Sigma_{\mathbf{R}}(0)$ normierte Gaußverteilung $\Sigma_{\mathbf{R}}(0) \exp(-t^2/\tau^2)$ und $\tau = 2t$ subtrahiert und so die führende Ordnung des $1/\omega$ -Verhaltens entfernt. Die verbleibende Funktion wird unkritisch mit der FFT Laplace-transformiert. Die Laplace-Transformation der entfernten Gaußverteilung ist die Fehlerfunktion. Wird sie gewichtet mit $\Sigma_{\mathbf{R}}(0)$ zu der Laplace-transformierten Funktion hinzugefügt, liegt die vollständige Laplace-transformierte Selbstenergie $\Sigma_{\mathbf{R}}(\omega + i\gamma)$ vor.

Für die Fourier-Transformationen wird das FFTPACK 4 von Paul N. Swartztrauber (National Center for Atmospheric Research, Boulder Colorado) verwendet.

A.3 Analytische Fortsetzungen

Bei der Lösung der FLEX SK-Gleichungen und der Rechnung zur vertexkorrigierten optischen Leitfähigkeit treten an einigen Stellen analytische Fortsetzungen auf, deren Umsetzung hier erläutert wird.

Für die analytische Fortsetzung der selbstkonsistenten Funktionen von der γ -Contour auf die reelle Achse wird eine Padé-Approximation mit 10 Stützstellen und einem Neville-artigen Algorithmus von Bulirsch und Stoer [145] verwendet.

Die in Abschnitt A.4 beschriebene Interpolation von Stützstellen wird ebenfalls mit 10 Punkten und einer Kettenbruchdarstellung nach Thiele [146] durchgeführt. Der relative Fehler bei der Interpolation liegt in der Größenordnung der Genauigkeit des verwendeten Zahlentyps *float* und ist für die Ergebnisse ohne Bedeutung.

Bei dem Neville-artigen Algorithmus kann über den Beitrag des letzten hinzugenommenen Punktes der Fehler der Approximation bestimmt werden. Mit steigender Stützstellenanzahl sinkt dieser Beitrag zunächst, kann aber wieder ansteigen.

Der Beitrag des letzten Punktes wird als Kriterium für den Fehler bei der Berechnung der effektiven Wechselwirkung $V_{\mathbf{k}}(0+i0^+)$ in Gl. (A.7) verwendet. Da hier eine hohe Genauigkeit erforderlich ist, werden Padé-Approximationen mit 7 bis 20 Punkten berechnet und die mit dem kleinsten Fehler verwendet. Der Vorteil der Kettenbruchdarstellung liegt in der richtigen Behandlung des Hochfrequenzverhaltens, nämlich $\sim 1/\omega$ für die Greensfunktion und die Selbstenergie und $\sim 1/\omega^2$ für die Suszeptibilität und die effektive Wechselwirkung. Die Kettenbruchdarstellung kommt ebenfalls bei der analytischen Fortsetzung von Matsubara-Frequenzen auf die reelle Achse oder auf die γ -Contour mit der vollen Anzahl gespeicherter Stützstellen zum Einsatz.

Zur Berechnung der optischen Leitfähigkeit mit Vertexkorrekturen sind analytische Fortsetzungen der Greensfunktion und der effektiven Wechselwirkung von der γ -Contour auf Matsubara-Frequenzen und der Strom-Suszeptibilität von Matsubara-Frequenzen zurück auf die reelle Achse notwendig. Die analytische Fortsetzung gerade der renormierten Funktionen ist numerisch kritisch [125] und macht die folgende Analyse der Stabilität des Verfahrens notwendig.

Die Rücktransformation $i\nu_m \rightarrow \omega + i0^+$ wird mit dem Kettenbruch nach Thiele [146] durchgeführt. Setzt man diesen auch für die Richtung $\omega + i\gamma \rightarrow i\omega_n, i\nu_m$ bei renormierten Funktionen ein, so treten erhebliche Artefakte auf, die das Verfahren unbrauchbar machen.

Für die Transformation $\omega + i\gamma \rightarrow i\omega_n, i\nu_m$ wird hier für die Greensfunktion die Kramers-Kronig-Relation

$$G_{\mathbf{k}}(i\omega_n) = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{-\frac{1}{\pi} \text{Im} G_{\mathbf{k}}(\omega' + i0^+)}{i\omega_n - \omega'} \quad (\text{A.9})$$

verwendet, die keine derartigen Artefakte erzeugt. Bei der Fortsetzung der bosonischen Wechselwirkung wird analog vorgegangen. Der Wert bei der Matsubara-Frequenz $i\nu_0$ wird wie oben mit einer Neville-artigen Padé-Approximation mit 10 Punkten ausgehend von $\omega + i\gamma$ bestimmt.

Die Stabilität der beiden analytischen Fortsetzungen wird anhand der Dichte-Suszeptibilität gemeinsam validiert. Diese entspricht der Berechnung der Teilchen-Loch-Blase $\chi_{\mathbf{q}}^0$ aus Gl. (3.4). Sie kann zum einen auf der in Abschnitt A.1 beschriebenen γ -Contour und zum anderen mit den beiden analytischen Fortsetzungen und der Summation von Matsubara-Frequenzen nach Gl. (3.4) durchgeführt werden.

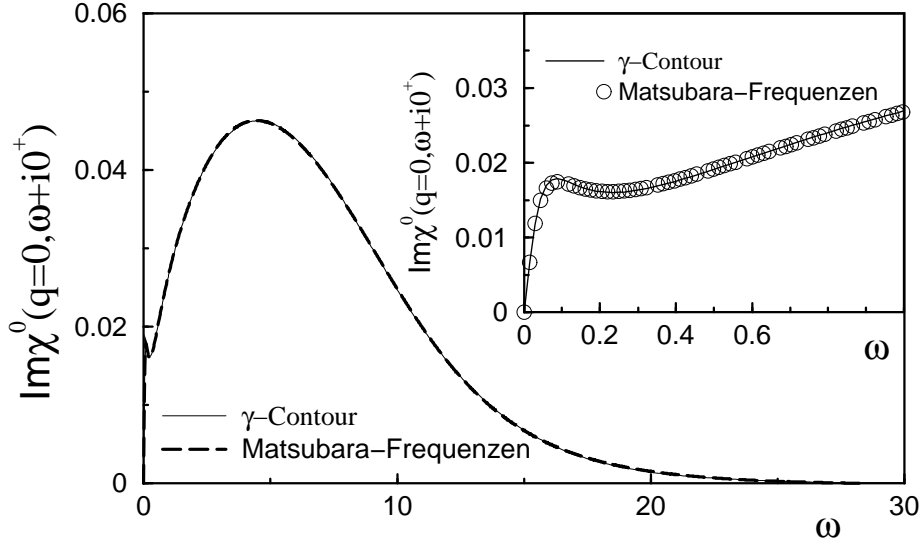


Abbildung A.1: Vergleich der Imaginärteile der Dichte-Suszeptibilität auf der reellen Achse ohne Vertexkorrektur für $t' = 0.8t$, $T = 0.05t$, $U = 6t$ und $\delta = 0$, berechnet zum einen auf der γ -Contour zum anderen mit Matsubara-Frequenzen auf der imaginären Achse. Oben rechts ist das Niederfrequenzverhalten der beiden Kurven dargestellt.

In Abb. A.1 wird exemplarisch für einen Parametersatz die Dichte-Suszeptibilität ohne Vertexkorrektur auf der reellen Achse verglichen, die mit den zwei Verfahren berechnet wurde. Offensichtlich stimmen die Ergebnisse der beiden Verfahren sehr gut überein. Im Niederfrequenzverhalten ist eine geringfügige Abweichung der beiden Kurven zu sehen, die allerdings keine Auswirkungen auf die physikalischen Schlußfolgerungen in Kapitel 5 hat. Die beiden analytischen Fortsetzungen erzeugen keine Artefakte und nur minimale quantitative Abweichungen der Ergebnisse in diesem Vergleich.

Änderungen hierzu ergeben sich bei der Berechnung der Strom-Suszeptibilität lediglich aus der impulsabhängigen Gewichtung durch die unrenormierten Strom-Vertizes $\gamma_{\mathbf{k}}^0$, die die Frequenzsummation nicht betreffen.

Die beiden analytischen Fortsetzungen können als hinreichend stabil angesehen werden, um für die in Abschnitt 5.2 beschriebene Implementierung der Berechnung der optischen Leitfähigkeit mit Vertexkorrektur eingesetzt zu werden.

A.4 Reduktion des Speicherbedarfs

Für die schnellen Fourier-Transformationen zwischen der frequenz- und zeitabhängigen Darstellung sind 2^m äquidistante Stützstellen notwendig, auch wenn die dargestellten Funktionen bei großem Abstand vom Ursprung lediglich einen monotonen Abfall zeigen.

Der damit verbundene hohe Speicherbedarf kann verringert werden, indem die Funktionen für alle Operationen zwischen den $\omega \leftrightarrow t$ -Transformationen mit einem nichtäquidistanten Gitter und weniger Stützstellen beschrieben werden. Diese Methode findet hier Anwendung. Mit wachsendem Abstand zum Ursprung wird die Stützstellendichte exponentiell reduziert. Für die Fourier- und Laplace-Transformationen werden die temporär vernachlässigten Stützstellen für $\omega + i\gamma$ mit einer Padé-Approximation mit 10 Punkten und für reelle zeitabhängige Funktionen mit einer Spline-Interpolation rekonstruiert³. Die Qualität der Interpolation ist hervorragend. Greensfunktionen, die mit und ohne temporär vernachlässigten Punkten berechnet wurden, erweisen sich als identisch im Rahmen der Genauigkeit des verwendeten Datentyps *float*.

Die hier betrachteten Funktionen sind auf der Frequenz- und Zeitachse hinreichend glatt, so daß weniger als 1/4 der äquidistanten Stützstellen (typischerweise 1001 von 4096 Punkten) ständig im Speicher gehalten werden muß. Entsprechend reduziert sich der Speicherbedarf des Programms auf etwa 1/4 der Variante mit äquidistanten Stützstellen. Auch die Geschwindigkeit wird deutlich erhöht, da u.a. die zweidimensionalen Fourier-Transformationen zwischen der Impuls- und Ortsraum-Darstellung für weniger Frequenz- bzw. Zeitpunkte durchzuführen sind.

A.5 Symmetrien der Brillouin-Zone

Neben der gerade beschriebenen Methode zur Reduktion des Speicherbedarfs können die Symmetrien der Brillouin-Zone (BZ) ausgenutzt werden. Im Speicher gehalten wird lediglich der irreduzible Teil der BZ (vgl. Abb. A.2). Die verbleibenden Teile werden durch Spiegelungen an den Symmetrieachsen oder Inversion $\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}$ erzeugt. In dem hier fortgeführten und erweiterten Programmpaket werden drei Gittersymmetrien unterschieden. Das Quadratgitter SQL, das hier untersuchte anisotrope Dreieckgitter TL und ein Gitter

³Die von J. Altmann implementierten Routinen zur Rekonstruktion mit *Linear Progressive Coding* (LPC) [66] sowie die Rekonstruktion von Funktionen auf Matsubara-Frequenzen finden in dieser Arbeit keine Anwendung. Letztere erübrigt sich, da hier Funktionen auf Matsubara-Frequenzen stets in der nichtreduzierten Form dargestellt werden.

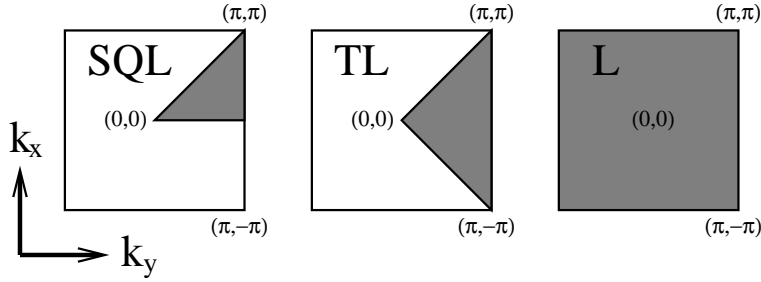


Abbildung A.2: Die Brillouin-Zone (BZ) der drei Gitterklassen SQL, TL, L. Der tatsächlich gespeicherte Teil der BZ ist schraffiert dargestellt. Die nicht gespeicherten Teile werden durch Symmetrieoperationen erhalten.

L ohne Ausnutzung von Symmetrien.

Da das Quadratgitter SQL sowohl bzgl. der Achsen als auch bzgl. der Diagonalen spiegelsymmetrisch ist, bleibt lediglich 1/8 der BZ und die Fourier-Transformationen zwischen der \mathbf{k} - und \mathbf{R} -Darstellung können mit schnellen Fourier-Sinus bzw. -Cosinus Transformationen durchgeführt werden. Bei dem anisotropen Dreiecksgitter der Gitterklasse TL entfallen die Spiegelsymmetrien an den Achsen, so daß hier 1/4 der BZ gespeichert und komplexe Fourier-Transformationen eingesetzt werden.

Bei der Berechnung der dynamischen Leitfähigkeit in Kapitel 5 ist wegen der p -Symmetrie der Strom-Vertizes $\gamma_{\mathbf{k}}^0$ nur noch die Inversionssymmetrie (z.B. $\gamma_{-\mathbf{k}}^0 = \gamma_{\mathbf{k}}^0$) gegeben. Hier kommt das Gitter L zum Einsatz.⁴

A.6 Konvergenz zur Selbstkonsistenz

Die Integralgleichungen der FLEX SK-Gleichungen nahe der reellen Achse werden iterativ gelöst. Ausgangspunkt ist die unrenormierte Greensfunktion für $U = 0$. Mit jeder Iteration wird die Hubbard-Abstoßung erhöht bis der Zielwert erreicht ist. Hierbei muß U stets unterhalb der kritischen Hubbard-Abstoßung U_{cr} des verallgemeinerten Stoner-Kriteriums für die Spin-Suszeptibilität in Gl. (3.2) bleiben. Das U_{cr} wird in jeder Iteration bestimmt und der Abstand $U_{cr} - U$ mit fortschreitender Konvergenz langsam verringert.

Das chemische Potential μ wird so nachgeführt, daß die konvergierte Lösung eine vorgegebene Dotierung δ (siehe Gl. (4.1)) erreicht.

Bei Verwendung der mit der Dyson-Gleichung erhaltenen Greensfunktion

⁴Auf die Ausnutzung der Inversionssymmetrie wurde zugunsten der Implementierung der allgemeinsten Gitterstruktur verzichtet.

als Startwert für die nächste Iteration zeigen sich starke Oszillationen der Ergebnisse aufeinanderfolgender Iterationen speziell bei kleinem Abstand $U_{cr} - U$. Diese Oszillationen verlangsamen die Konvergenz und können sie sogar vollständig verhindern. Sie werden gedämpft, indem in jeder Iteration der neuen Greensfunktion ein Teil der Greensfunktion der letzten Iteration beigemischt wird. Die anfängliche Beimischung für $U = 2t$ von 50% wird mit wachsendem U und bei einem zwischenzeitlichen Anstieg der maximalen relativen Differenz

$$\text{mRD} = \max_{\mathbf{k}, j} \left(1 - \left| \frac{G_{\mathbf{k}}^{(n)}(\omega_j + i\gamma)}{G_{\mathbf{k}}^{(n+1)}(\omega_j + i\gamma)} \right| \right) \quad (\text{A.10})$$

bei zwei aufeinanderfolgenden Iterationen n und $n+1$ reduziert. Bei $U \sim 10t$ wird Konvergenz nur mit einer Beimischung von 90% der Greensfunktion der letzten Iteration erreicht.

Ein Satz von Greensfunktion, effektiver Wechselwirkung und Selbstenergie wird als selbstkonsistent angesehen, wenn die mRD aus Gl. (A.10) aufeinanderfolgender Iterationen der Greensfunktion weniger als 1/1000 des aktuellen Beimischungsfaktors beträgt. Zusätzlich darf der Abstand zur angestrebten Dotierung und zur vorgegebenen Hubbard-Abstoßung 1/10000 der jeweiligen Größen nicht überschreiten. Die FLEX SK-Gleichungen in dem hier verwendeten Verfahren konvergieren nach 15 ($U = 0 \rightarrow 2t$) bis maximal 80 ($U = 8t \rightarrow 10t$) Iterationen.

Die Konvergenzgeschwindigkeit der Iterationen hängt wesentlich von der Stärke der antiferromagnetischen Spinfluktuationen des Systems ab, wird also klein mit wachsendem U und in Richtung kleiner diagonalen Hüpfamplitude t' . Die zu tiefen Temperaturen schärferen Pole der Greensfunktion können mit Erhöhung des Abstands γ zur reellen Achse verbreitert werden. Hier begrenzt die Frequenzauflösung den Konvergenzbereich des Verfahrens.

Anhang B

Das Programmpaket

Die hier vorgestellten Rechnungen wurden mit den im folgenden beschriebenen Programmen am Institut für Theoretische Physik der TU Braunschweig durchgeführt auf Sun U10, U60, E450 Workstations mit 333 MHz SPARC-ii Prozessoren und auf Intel-PCs mit 500MHz bis 2.4GHz Athlon- und Pentium-Prozessoren.

Eine Iteration der FLEX Selbstkonsistenz-Gleichungen mit typischen Parametern (64×64 **k**-Gitter = 1089 komplexe Funktionen mit je 4096 Stützstellen, von denen 1001 ständig im Speicher gehalten werden) benötigt auf der schnellsten Maschine ca. 4 Minuten, etwa ebensolange wie eine Iteration der Vertexgleichung mit 64×64 **k**-Punkten und 512 Matsubara-Frequenzen.

Die Programme wurden in der objektorientierten Programmiersprache C++ entwickelt. Ihnen liegt die in Abb. B.1 skizzierte Hierarchie von Klassen zugrunde. Die Klassen sind modular aufgebaut, Zugriffe auf die in den Objekten enthaltenen Daten werden nur über die Schnittstellen der Objekte zugelassen.

B.1 Entwicklung

Die wesentliche Programm-Struktur und große Teile des Quelltextes, nämlich die Implementierung der SQL-Symmetrieklasse des Quadratgitters, sind von J. Altmann im Rahmen seiner Promotion erstellt worden [66].

Der Quelltext der SQL-Implementierung hat einen Umfang von ca. 21000 Zeilen. Das Programm wurde mit dem SunWorkshop (SWS) 3.0 auf Sun Sparc Workstations erstellt.

In dieser Arbeit wurde dieses Programm weitergeführt und erweitert. Es wurden neue Klassen mit der Symmetrie des anisotropen Dreieckgitters (TL) sowie eine minimale Fassung von Klassen des Quadratgitters ohne Ausnutzung

von Symmetrien (L) erstellt.

Der Quellcode wurde auf den SWS 5.0 und den GNU-Compiler gcc 2.95.3 portiert und läuft auf Sun Workstations sowie Linux PCs. Die von J. Altmann geschriebenen String- und komplexe Fließkommazahlen-Klassen wurden durch STL-Klassen ersetzt, die Quellen an diversen Stellen konform zum Standard ISO/IEC 14882-1998 gemacht, die Dokumentation erweitert, einige neue Methoden implementiert, Fehler korrigiert, Redundanzen entfernt und die objektorientierte '*ist-ein*'-Vererbungs-Regel [147] realisiert. Durch die umfangreichen Umbauarbeiten am Quellcode konnte trotz der neuen Klassen der Umfang auf ca. 19000 Zeilen reduziert werden.

B.2 Kurzbeschreibung der Klassen

Abb. B.1 zeigt das Konzept von zwei Hauptästen der Klassenhierarchie, die am Ende in den Klassen SQL/TL/L(Z)FuncArray zusammengeführt werden. Der linke Ast stellt ein Feld von frequenz- bzw. zeitabhängigen Funktionen bereit, der rechte einen zweidimensionalen Vektor mit einer der drei BZ-Symmetrien SQL, TL oder L. Neben den speziellen Operationen, wie den Fourier- und Laplace-Transformationen, der Extra- und Interpolationen, analytischen Fortsetzungen mit Padé- und Kramers-Kronig-Relationen usw., werden in den Klassen Operatoren für alle algebraischen Grundoperationen mit Objekten der eigenen Klasse, entsprechender und zugrunde liegender Klassen sowie den Basistypen überladen. Anhand der an alle Objekte vererbten Status-Klassen werden nicht erlaubte Operationen abgefangen. Mit diesen Klassen und den darin enthaltenen Methoden ist es möglich, den wesentlichen Teil der FLEX-Selbstkonsistenz Schleife mit ca. 100 Programmzeilen zu implementieren.

Aus dem von J. Altmann übernommenen Konzept wurde die Trennung vieler Module in eine reell- und eine komplexwertige Klasse (z.B. Func und ZFunc) hier weitergeführt. Diese Trennung ist historisch und prinzipiell unnötig. Tatsächlich wurden alle Berechnungen mit den jeweiligen komplexwertigen Klassen durchgeführt. Die reellwertigen Klassen haben sich bei der Erzeugung der Datensätze für die Visualisierungen als komfortabel herausgestellt, was die Redundanz im Quellcode überwiegt.

Im folgenden werden die wesentlichen Funktionalitäten der Klassen beschrieben, wobei jeweils reell- und komplexwertige Klassen zusammengefaßt sind.

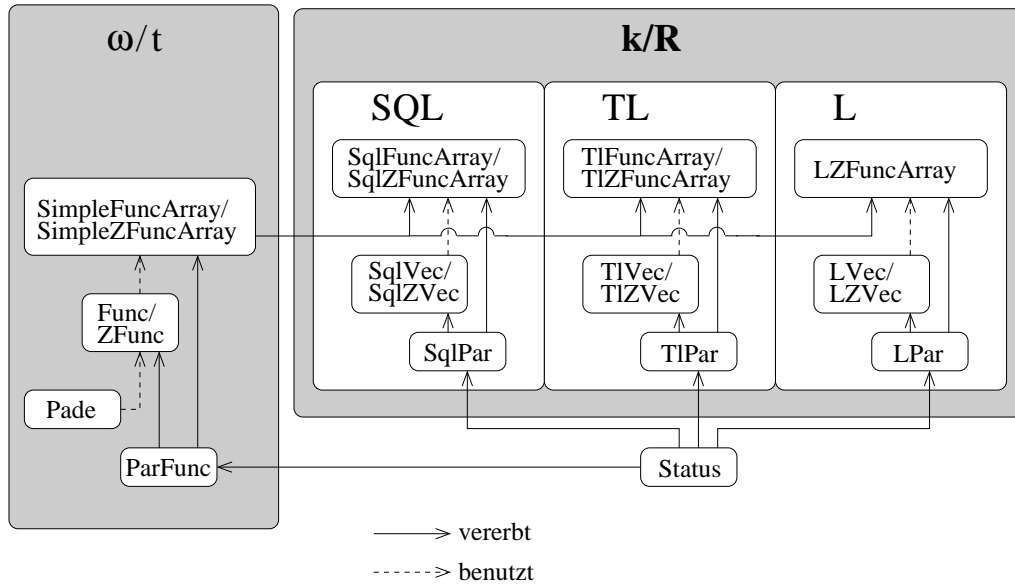


Abbildung B.1: Klassenhierarchie des Programmpakets zur Lösung der FLEX SK-Gleichungen und der Vertexgleichung. Der links dargestellte Hauptast beschreibt die zeit- bzw. frequenzabhängigen Eigenschaften von Funktionen. Der den Impulsraum beschreibende rechte Hauptast ist in die drei Klassen der hier implementierten Gittersymmetrien (SQL, TL, L) aufgeteilt.

Error Eine allgemeine und vier für die folgenden Klassen spezialisierte Fehlerklassen (**WrongFileType**, **FileOpenError**, **ParameterNotFound**, **NoValidFunction**). Die Fehlerbehandlung erfolgt mit dem throw-catch Verfahren.

StrBuf Ein allgemeiner String Buffer. Hier werden einige grundlegende Manipulationen an Strings, wie das Extrahieren und Einfügen von Integer- und Fließkommazahlen bereitgestellt. **StrBuf** wird für das Lesen und Schreiben der Dateinamen sowie der Parameterdatei verwendet.

Status Ein Satz von 12 Status-Klassen, die die verschiedenen allgemeinen und aktuellen Zustände eines Objekts beschreiben (z.B. k/R , ω/t , $\omega + i\gamma/i\omega_n$, Symmetrien der BZ)

Pade die in Abschnitt A.3 beschriebenen Padé-Approximationen nach Thiele und Neville.

ParFunc Parameter, Zustände und Hilfsarrays für die Manipulation reeller und komplexer Funktions-Objekte.

(Z)Func stellt eine reelle bzw. komplexe Funktion an diskreten Stützstellen dar und implementiert alle Operationen für einzelne Funktionen. Wichtige Methoden sind die Fourier- und Laplace-Transformationen, die Stützstellen-Interpolation sowie die Methoden zur analytischen Fortsetzung.

Simple(Z)FuncArray Diese Klassen implementieren Felder von reellen bzw. komplexen Funktionen der Klasse **Func/ZFunc**, wobei die Numerierung der Funktionen noch keine ausgezeichnete Reihenfolge hat.

SqlPar/TlPar/LPar Parameter, Zustände und Hilfsarrays für reelle und komplexe 2D Vektoren. Hier wird die Numerierung der Funktionen in **Simple(Z)FuncArray** auf die zweidimensionalen Indexierungen des Quadratgitters (SQL), des anisotropen Dreieckgitters (TL) bzw. des einfachen quadratischen Gitters (L) abgebildet.

Sql(Z)Vec/Tl(Z)Vec/L(Z)Vec Reelle und komplexe 2D Vektoren, die zusammen mit den in den vorangegangenen Klassen festgelegten Gittersymmetrien einen Funktionswert auf der BZ darstellen. Wichtige Methoden sind die 2D $\mathbf{k} \leftrightarrow \mathbf{R}$ Fourier-Transformationen.

Sql(Z)FuncArray/Tl(Z)FuncArray/LZFuncArray reelle und komplexe Funktionen-Felder, die zum einen die Methoden zur Manipulation auf der Frequenz-/Zeitachse und zum anderen die Methoden zur Manipulation auf dem Impuls-/Ortsraumgitter erben sowie weitere Methoden implementieren.

Anhang C

Finite-Size-Effekte

In diesem Abschnitt wird gezeigt, daß die Vernachlässigung von Finite-Size-Effekten bei der in dieser Arbeit gewählten Diskretisierung der Brillouin-Zone gerechtfertigt ist. Dazu werden in Abb. C.1 Spektralfunktionen, die Zustandsdichte und die Spin-Suszeptibilität, berechnet auf einem 32x32-, 64x64- und 128x128-Gitter, verglichen. Alle vorangegangenen Ergebnisse wurden auf einem 64x64-Gitter berechnet.

Abb. C.1(a) zeigt die Spektralfunktion $A_{\mathbf{k}}(\omega)$ bei $\mathbf{k} = (0, 0)$ im Zentrum der BZ. Hier bringt bereits der Schritt vom 32x32- zum 64x64-Gitter keine merklichen Veränderungen mehr.

Nahe der Fermikante bei $\mathbf{k} = \frac{7}{16}(\pi, \pi)$, dargestellt in Abb. C.1(b), ändert sich in der Spektralfunktion der Maximalwert am Quasiteilchenpeak von der Gittergröße 32x32 zu 64x64 um ca. 10%, von 64x64 zu 128x128 um 0.5%.

Wichtig für das Verschwinden von Finite-Size-Effekten ist die ausreichende Auflösung des Paramagnon-Peaks. Entsprechend empfindlich für Variation der Gittergröße ist die in Abb. C.1(d) dargestellte Spin-Suszeptibilität $\text{Re}T_{sf}(\mathbf{q}, \omega)$ bei $\mathbf{q} = \frac{14}{16}(\pi, \pi)$ nahe des inkommensurablen Maximums. Von der Gittergröße 32x32 zu 64x64 ändert sich der Maximalwert um ca. 33%, von 64x64 zu 128x128 um ca. 1,5%. Allgemein ist die notwendige Systemgröße abhängig vom Abstand des Systems zur AFM Instabilität. Auch bei kleinen Temperaturen, großer Hubbard-Abstoßung U , negativer Dotierung und kleiner diagonalen Kopplung t' erweisen sich die Ergebnisse als nahezu unabhängig von der Systemgröße.

Die in Abb. C.1(c) dargestellten Zustandsdichten zeigen Oszillationen in der Umgebung von $\omega = 0$, die mit zunehmender Gittergröße abklingen. Ursache hierfür ist die Summation von scharfen Quasiteilchenpeaks an der Fermi-Energie. Diese Oszillationen sind also zurückzuführen auf eine relativ schwache Renormierung der Quasiteilchen. Sie werden also gerade in Richtung zunehmender Spinfluktuationen geringer. Physikalische Schlußfolgerungen werden von ihnen nicht beeinflusst.

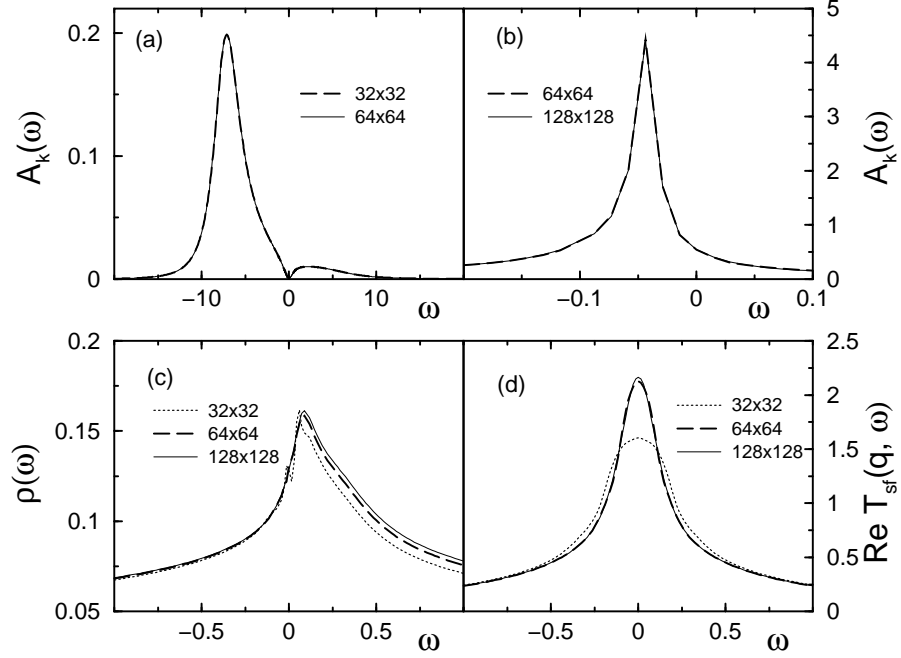


Abbildung C.1: Zur Vernachlässigbarkeit von Finite-Size Effekten: Vergleich einiger Größen berechnet auf einem 32x32-, 64x64- und 128x128-Gitter bei $t' = 0.8t$, $T = 0.025t$, $U = 6t$ und $\delta = 0.0$. (a) Spektralfunktion $A_{\mathbf{k}}(\omega)$ im Zentrum der BZ bei $\mathbf{k} = (0, 0)$, (b) Spektralfunktion $A_{\mathbf{k}}(\omega)$ mit $\mathbf{k} = \frac{7}{16}(\pi, \pi)$ an der Fermikante, (c) Zustandsdichte $\rho(\omega)$, (d) $\text{Re } T_{sf}(\mathbf{q}, \omega)$ mit $\mathbf{q} = \frac{14}{16}(\pi, \pi)$ am inkommensurablen Paramagnon-Peak.

Bedingt durch die Verwendung der FFT für die Impulsraum-Faltungen kann die Gittergröße nur in Verdopplungsschritten erhöht werden. Wie oben gezeigt, betragen die Änderungen beim Übergang vom 64x64- zum 128x128-Gitter, mit Ausnahme der Zustandsdichte, ca. 1% und sind damit um wenigstens eine Größenordnung kleiner als bei dem vorangegangenen Verdopplungsschritt. Bei der verwendeten Diskretisierung mit einem 64x64-Gitter sind die Ergebnisse also im wesentlichen nicht mehr abhängig von der Systemgröße.

Literaturverzeichnis

- [1] J. G. Bednorz und K. A. Müller. Z. Phys. B **64** (1986) 189.
- [2] K. Bechgaard, C. S. Jacobsen, K. Mortensen, J. H. Pedersen und N. Thorup. Solid State Comm. **33** (1980) 1119.
- [3] H. Kamerlingh-Onnes. Comm. Phys. Lab. Univ. Leiden **119, 120, 122** (1911).
- [4] R. H. McKenzie. Science **278** (1997) 820.
- [5] H. Kino und H. Fukuyama. J. Phys. Soc. Jpn. **65** (1996) 2158.
- [6] A. Kawamoto, K. Miyagawa und K. Kanoda. Phys. Rev. B **55** (1997) 14140.
- [7] K. Kanoda. Physica C **282-287** (1997) 299.
- [8] D. Fournier, M. Poirier, M. Castonguay und K. Truong. cond-mat/0209536 (2003).
- [9] P. Limette, P. Wzietek, S. Florens, A. Georges, T. A. Costi, C. Pasquier, D. Jérôme, C. Mézière und P. Batail. Phys. Rev. Lett. **91** (2003) 016401.
- [10] Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, M. Maesato und G. Saito. cond-mat/0307483 (2003).
- [11] F. Kagawa, T. Itou, K. Miyagawa und K. Kanoda. cond-mat/0307304 (2003).
- [12] R. H. McKenzie. Comments Cond. Matt. Phys. **18** (1998) 309.
- [13] K. Takada, H. Sakurai, E. Takayama-Muromachi, F. Izumi, R. A. Dillanian und T. Sasaki. Nature **422** (2003) 53.

- [14] H. Sakurai, K. Takada, S. Yoshii, T. Sasaki, K. Kindo und E. Takayama-Muromachi. cond-mat/0304503 (2003).
- [15] G. Baskaran. Phys. Rev. Lett. **91** (2003) 097003.
- [16] B. Kumar und B. S. Shastry. Phys. Rev. B **68** (2003) 104508.
- [17] M. Ogata. cond-mat/0304405 (2003).
- [18] Q. H. Wang, D. H. Lee und P. A. Lee. cond-mat/0304377 (2003).
- [19] C. Honerkamp. Phys. Rev. B **68** (2003) 104510.
- [20] R. E. Schaak, T. Klimczuk, M. L. Foo und R. J. Cava. Nature **424** (2003) 527.
- [21] B. Bernu, P. Lecheminant, C. Lhuillier und L. Pierre. Phys. Rev. B **50** (1994) 10048.
- [22] L. Capriotti, A. E. Trumper und S. Sorella. Phys. Rev. Lett. **82** (1999) 3899.
- [23] H. Kondo und T. Moriya. J. Phys. Soc. Jpn. **68** (1999) 3170.
- [24] E. Dagotto. Rev. Mod. Phys. **66** (2003) 763.
- [25] W. Brenig. Physics Reports **251** (1995) 153.
- [26] M. R. Norman und C. Pepin. Rep. Prog. Phys. **66** (2003) 1547.
- [27] J. Singleton und C. Mielke. Contemporary Physics **43** (2002) 63.
- [28] M. Lang und J. Müller. cond-mat/0302157 (2003).
- [29] J. R. Schrieffer. Theory of Superconductivity. W. A. Benjamin Inc., New York, Amsterdam (1964).
- [30] J. Bardeen, J. N. Cooper und J. R. Schrieffer. Phys. Rev. **108** (1957) 1175.
- [31] J. Bardeen, L. N. Cooper und J. R. Schrieffer. Phys. Rev. **106** (1957) 162.
- [32] Z.-X. Shen, D. S. Dessau, B. O. Wells, D. M. King, W. E. Spicer, A. J. Arko, D. Marshall, L. W. Lombardo, A. Kapitulnik, P. Dickinson, S. Doniach, J. DiCarlo, T. Loeser und C. H. Park. Phys. Rev. Lett. **70** (1993) 1553.

-
- [33] C. C. Tsuei, J. R. Kirtley, C. C. Chi, L. S. Yu-Jahnes, A. Gupta, T. Shaw, J. Z. Sun und M. B. Ketchen. Phys. Rev. Lett. **73** (1994) 593.
- [34] C. C. Tsuei und J. R. Kirtley. Physica C **282-287** (1997) 4.
- [35] J. Schmalian. Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 4232.
- [36] J. Wosnitzer. Superconductivity in Low-Dimensional Organic Metals, in Band 34 von *Studies of High Temperature Superconductors*. Nova Science Publishers Inc., New York, (2000) 97.
- [37] A. Tanaka und X. Hu. cond-mat/0304409 (2003).
- [38] I. Ikeda, Y. Nisikawa und K. Yamada. cond-mat/0308472 (2003).
- [39] K. Murata, M. Ishibashi, Y. Honda, N. A. Fortune, M. Tokumoto, K. Nobumori und H. Anzai. Solid State Comm. **76** (1990) 377.
- [40] Y. V. Sushko. J. Phys. I France **1** (1991) 1375.
- [41] K. Kanoda. Hyperfine Int. **104** (1997) 235.
- [42] K. Kornelsen, J. E. Eldridge, C. C. Homes, H. H. Wang und J. M. Williams. Solid State Comm. **72** (1989) 475.
- [43] J. E. Eldridge, K. Kornelsen, H. H. Wang, J. M. Williams, A. V. Strieby Crouch und D. M. Watkins. Solid State Comm. **79** (1991) 583.
- [44] J. Rossat-Mignod, L. P. Regnault, C. Vettier, P. Bourges, P. Burlet, J. Bossy, J. Y. Henry und G. Lapertot. Physica C **185-189** (1991) 86.
- [45] H. A. Mook, M. Yethiraj, G. Aeppli, T. E. Mason und T. Armstrong. Phys. Rev. Lett. **70** (1993) 3490.
- [46] H. Mayaffre, P. Wzietek, C. Lenoir, D. Jérôme und P. Batail. Europhys. Lett. **28** (1994) 205.
- [47] A. Kawamoto, K. Miyagawa, Y. Nakazawa und K. Kanoda. Phys. Rev. Lett. **74** (1995) 3455.
- [48] P. Wzietek, H. Mayaffre, D. Jérôme und S. Brazovskii. J. Phys. I France **6** (1996) 2011.
- [49] T. Fujimoto. cond-mat/0307127 (2003).

- [50] K. Ishida, Y. Ihara, Y. Maeno, C. Michioka, M. Kato, K. Yoshimura, K. Takada, T. Sasaki, H. Sakurai und E. Takayama-Muromachi. cond-mat/0308506 (2003).
- [51] T. Li und Y.-J. Jiang. cond-mat/0309275 (2003).
- [52] H. Aoki. cond-mat/0305490 (2003).
- [53] C. M. Varma, P. B. Littlewood, S. Schmitt-Rink, E. Abrahams und A. E. Ruckenstein. Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 1996.
- [54] D. Pines. Physica B **163** (1990) 78.
- [55] D. Pines. Zeitschrift für Physik B **103** (1997) 129.
- [56] S. C. Zhang. Science **275** (1997) 1089.
- [57] P. W. Anderson. Science **235** (1987) 1196.
- [58] N. E. Bickers, D. J. Scalapino und S. R. White. Phys. Rev. Lett. **62** (1989) 961.
- [59] D. J. Singh. Phys. Rev. B **61** (2000) 13397.
- [60] L.-J. Zou, J.-L. Wang und Z. Zeng. cond-mat/0307560 (2003).
- [61] J. Altmann, W. Brenig und A. P. Kampf. Eur. Phys. J. B **18** (2000) 429.
- [62] S. Wermbter. Phys. Rev. B **55** (1997) R10149.
- [63] T. Dahm und L. Tewordt. Phys. Rev. Lett. **74** (1995) 793.
- [64] J. Schmalian, D. Pines und B. Stojković. Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 3839.
- [65] J. J. Deisz, D. W. Hess und J. W. Serene. Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 373.
- [66] J. Altmann. Das zweidimensionale Hubbardmodell in der Fluktuations–Austausch–Näherung, Dissertation, Universität zu Köln (1998).
- [67] T. Dahm, D. Manske und L. Tewordt. Europhys. Lett. **55** (2001) 93.
- [68] K. Kuroki und H. Aoki. Phys. Rev. B **60** (1999) 3060.

-
- [69] H. Kino und H. Kontani. J. Phys. Soc. Jpn. **67** (1998) 3691.
- [70] H. Kondo und T. Moriya. J. Phys. Soc. Jpn. **67** (1998) 3695.
- [71] H. Kondo und T. Moriya. J. Phys.: Condens. Matter **11** (1999) L363.
- [72] S.-W. Tsai und J. B. Marston. cond-mat/0010300 (2000).
- [73] C. E. Campos, P. S. Sandhu, J. S. Brooks und T. Ziman. Phys. Rev. B **53** (1996) 12725.
- [74] M. Rahal, D. Chasseau, J. Gaultier, L. Ducasse, M. Kurmoo und P. Day. Acta Cryst. B **53** (1997) 159.
- [75] R. Louati, S. Charfi-Kaddour, A. Ben Ali, R. Bennaceur und M. Heritier. Phys. Rev. B **62** (2000) 5957.
- [76] J. Wosnitzer. Fermi Surfaces of Low-Dimensional Organic Metals and Superconductors, Band 134 von *Springer Tracts in Modern Physics*. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York (1996).
- [77] M. Dressel. Optical Properties of Layered Organic Superconductors, in Band 34 von *Studies of High Temperature Superconductors*. Nova Science Publishers Inc., New York (2000).
- [78] G. Baym und L. P. Kadanoff. Phys. Rev. **124** (1961) 287.
- [79] G. Baym. Phys. Rev. **127** (1962) 1391.
- [80] T. Ishiguro, K. Yamaji und G. Saito. Organic Superconductors, Band 88 von *Springer Series in Solid-State Sciences*. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 2. Auflage (1998).
- [81] J. Singleton. Rep. Prog. Phys. **63** (2000) 1111.
- [82] N. W. Ashcroft und N. D. Mermin. Solid State Physics. Saunders College Publications (1976).
- [83] J. A. Schlueter, A. M. Kini, B. H. Ward, U. Geiser, H. H. Wang, J. Mohtasham, R. W. Winter und G. L. Gard. Physica C **351** (2001) 261.
- [84] A. Girlando, M. Masino, A. Brillante, R. G. Della Valle und E. Venuti. Phys. Rev. B **66** (2002) 100507(R).

-
- [85] K. Kuroki, T. Kimura, R. Arita, Y. Tanaka und Y. Matsuda. Phys. Rev. B **65** (2002) 100516.
- [86] S. Lefebvre, P. Wzietek, S. Brown, C. Bourbonnais, D. Jérôme, C. Mézière, M. Fourmigué und P. Batail. Phys. Rev. Lett. **85** (2000) 5420.
- [87] H. Urayama, H. Yamochi, G. Saito, S. Sato, A. Kawamoto, J. Tanaka, T. Mori, Y. Maruyama und H. Inokuchi. Chem. Lett. (1988) 463.
- [88] K. Oshima, T. Mori, H. Inokuchi, H. Urayama, H. Yamochi und G. Saito. Phys. Rev. B **38** (1988) 938.
- [89] J. Caulfield, W. Lubczynski, F. L. Pratt, J. Singleton, D. Y. K. Ko, W. Hayes, M. Kurmoo und P. Day. J. Phys.: Condens. Matter **6** (1994) 2911.
- [90] M. Tamura, H. Tajima, K. Yakushi, H. Kuroda, A. Kobayashi, R. Kato und H. Kobayashi. J. Phys. Soc. Jpn. **60** (1991) 3861.
- [91] V. Ivanov, K. Yakushi und E. Ugolkova. Physica C **275** (1997) 26.
- [92] H. Kino und H. Fukuyama. J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995) 1877.
- [93] H. Kino und H. Fukuyama. J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995) 2726.
- [94] H. Kino und H. Fukuyama. J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995) 4523.
- [95] J. Sugiyama, J. H. Brewer, E. J. Ansaldo, B. Hitti, M. Mikami, Y. Mori und T. Sasaki. cond-mat/0310637 (2003).
- [96] B. Lorenz, J. Cmaidalka, R. L. Meng und C. W. Chu. Phys. Rev. B **68** (2003) 132504.
- [97] G. Baskaran. cond-mat/0306569 (2003).
- [98] J. W. Lynn, Q. Huang, C. M. Brown, V. L. Miller, M. L. Foo, R. E. Schaak, C. Y. Jones, E. A. Mackey und R. J. Cava. cond-mat/0307263 (2003).
- [99] J. Cmaidalka, A. Baikalov, Y. Y. Xue, R. L. Meng und C. W. Chu. cond-mat/0308301 (2003).
- [100] P. Lemmens, V. Gnezdilov, N. N. Kovaleva, K. Y. Choi, H. Sakurai, E. Takayama-Muromachi, K. Takada, T. Sasaki, F. C. Chou, C. T. Lin und B. Keimer. cond-mat/0309186 (2003).

-
- [101] H. Sakurai, K. Takada, F. Izumi, D. A. Dilanian, T. Sasaki und E. Takayama-Muromachi. cond-mat/0310717 (2003).
- [102] R. Ray, A. Ghoshray und K. Ghoshray. Phys. Rev. B **59** (1999) 9454.
- [103] H.-B. Yang, S.-C. Wang, A. K. P. Sekharan, H. Matsui, S. Souma, T. Sato, T. Takahashi, T. Takeuchi, J. C. Campuzano, R. Jin, B. C. Sales, D. Mandrus, Z. Wang und H. Ding. cond-mat/0310532 (2003).
- [104] M. Z. Hasan, Y.-D. Chuang, A. P. Kuprin, Y. Kong, D. Qian, Y. W. Li, B. L. Mesler, Z. Hussain, A. V. Fedorov, R. Kimmerling, E. Rotenberg, K. Rossnagel, H. Koh, N. S. Rogado, M. L. Foo und R. Cava. cond-mat/0308438 (2003).
- [105] P. W. Anderson. Mater. Res. Bull. **8** (1973) 153.
- [106] P. Fazekas und P. W. Anderson. Philos. Mag. **30** (1974) 423.
- [107] D. J. Singh. Phys. Rev. B **68** (2003) 020503.
- [108] Y. Imai und N. Kawakami. cond-mat/0305144 (2003).
- [109] J. Hubbard. Proc. Roy. Soc. London **A276** (1963) 238.
- [110] J. Kanamori. Prog. Theor. Phys. **30** (1963) 275.
- [111] M. C. Gutzwiller. Phys. Rev. Lett. **10** (1963) 159.
- [112] Y. Nagaoka. Solid State Comm. **3** (1965) 409.
- [113] R. R. P. Singh und D. A. Huse. Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 1766.
- [114] B. Bernu, C. Lhuillier und L. Pierre. Phys. Rev. Lett. **69** (1992) 2590.
- [115] C. Lhuillier, P. Sindzingre und J.-B. Fouet. Can. J. Phys. **79** (2001) 1525.
- [116] T. Hanisch, B. Kleine, A. Ritzl und E. Müller-Hartmann. Annalen der Physik **4** (1995) 303.
- [117] H. R. Krishnamurthy, C. Jayaprakash, S. Sarker und W. Wenzel. Phys. Rev. Lett. **64** (1990) 950.
- [118] M. Capone, L. Capriotti, F. Becca und S. Caprara. Phys. Rev. B **63** (2001) 085104.
- [119] H. Fukuyama, H. Seo und H. Kino. cond-mat/9909333 (1999).

- [120] A. Painelli, A. Girlando und A. Fortunelli. Phys. Rev. B **64** (2001) 054509.
- [121] M. Votja und E. Dagotto. Phys. Rev. B **59** (1999) R713.
- [122] M. C. Refolio, J. M. Lopez Sancho und J. Rubio. Phys. Rev. B **65** (2002) 075114.
- [123] N. E. Bickers und D. J. Scalapino. Annals of Physics **193** (1989) 206.
- [124] J. W. Serene und D. W. Hess. Phys. Rev. B **44** (1991) 3391.
- [125] S. R. White, D. J. Scalapino, R. L. Sugar und N. E. Bickers. Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 1523.
- [126] T. Dahm, L. Tewordt und S. Wermbter. Phys. Rev. B **49** (1994) 748.
- [127] T. Dahm und L. Tewordt. Phys. Rev. B **52** (1995) 1297.
- [128] C.-H. Pao und N. E. Bickers. Phys. Rev. B **49** (1994) 1586.
- [129] J. Schmalian, M. Langer, S. Grabowski und K. H. Bennemann. Computer Physics Communications **93** (1996) 141.
- [130] N. E. Bickers und S. R. White. Phys. Rev. B **43** (1991) 8044.
- [131] N. D. Mermin und H. Wagner. Phys. Rev. Lett. **17** (1966) 1133.
- [132] V. M. Galitski und A. B. Migdal. Sov. Phys. JETP **96** (1958) 96.
- [133] M. Gell-Mann und K. A. Brueckner. Phys. Rev. **106** (1957) 364.
- [134] A. Ugawa, G. Ojima, K. Yakushi und H. Kuroda. Phys. Rev. B **38** (1988) 5122.
- [135] J. J. Deisz, D. W. Hess und J. W. Serene. Phys. Rev. Lett. **76** (1996) 1312.
- [136] R. Hlubina und T. M. Rice. Phys. Rev. B **51** (1995) 9253.
- [137] W. Brenig und A. P. Kampf. Europhys. Lett. **24** (1993) 679.
- [138] Y. Liang und S. Feng. Phys. Lett. A **296** (2002) 301.
- [139] G. D. Mahan. Many-Particle Physics. Plenum Press, New York, London, 2. Auflage (1990).

-
- [140] H. Kontani, K. Kanki und K. Ueda. Phys. Rev. B **59** (1999) 14723.
 - [141] H. Kontani und H. Kino. Phys. Rev. B **63** (2001) 134524.
 - [142] K. Kornelsen, J. E. Eldridge, H. A. Charlier, H. H. Wang und J. M. Williams. Solid State Comm. **81** (1992) 343.
 - [143] N. L. Wang, B. P. Clayman, H. Mori und S. Tanaka. J. Phys.: Condens. Matter **12** (2000) 2867.
 - [144] P. Fazekas. Lecture Notes on Electron Correlation and Magnetism. World Scientific, Singapore, New Jersey, London, Hong Kong (1999).
 - [145] J. Stoer. Einführung in die Numerische Mathematik I, S. 61. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York (1972).
 - [146] J. Stoer. Einführung in die Numerische Mathematik I, S. 53. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York (1972).
 - [147] U. Breymann. C++ Eine Einführung. Hanser Verlag, München, Wien, 5. Auflage (1999).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei Herrn Prof. Dr. Wolfram Brenig bedanken, der mir die Anfertigung dieser Arbeit ermöglicht hat. Mit seinen zahlreichen konstruktiven Anregungen und einigen kritischen Fragen hat er großen Anteil am Gelingen dieser Arbeit.

Herrn Dr. Joachim Altmann danke ich für die Überlassung des FLEX-Quellcodes.

Bedanken möchte ich mich besonders bei Herrn Dr. Andreas Honecker, Herrn Dr. Christoph Jurecka und Herrn Dipl.-Phys. Fabian Heidrich-Meisner, die mit vielen hilfreichen Hinweisen und Tips zur Stelle waren und sich stets Zeit für meine Fragen genommen haben.

Allen früheren und jetzigen Mitgliedern des Instituts danke ich für das offene und angenehme Arbeitsklima.

Weiterhin möchte ich mich bei allen Freunden und Kollegen bedanken, die beim Korrekturlesen der Arbeit geholfen haben.

Besonderer Dank gilt Frau Dipl.-Pharm. Susen Oliczewski, die mich immer wieder motiviert und in jeglicher Hinsicht unterstützt hat.

